



TITLE:

気液固3相流動層およびスラリー気
泡塔の装置特性に関する研究(
Dissertation_全文)

AUTHOR(S):

福間, 三喜

CITATION:

福間, 三喜. 気液固3相流動層およびスラリー気泡塔の装置特性に関する研究. 京都大学, 1995, 博士(工学)

ISSUE DATE:

1995-09-25

URL:

<https://doi.org/10.11501/3106535>

RIGHT:

②
気液固 3 相流動層

および

スラリー気泡塔の

装置特性に関する

研究

1995 年

福 間 三 喜

目 次

第1章 緒 論	(1)
はじめに	(1)
1.1 気液固3相流動層の操作様式	(1)
1.1.1 Mode I-a流動層操作の分類	(3)
(a) 粒子径による分類	(3)
(b) 気泡の状態による分類	(4)
1.2 流動および混合特性	(6)
1.2.1 ホールドアップ	(6)
(a) 3相流動層のホールドアップ	(6)
(b) スラリー気泡塔のホールドアップ	(7)
1.2.2 臨界粒子濃度	(11)
1.2.3 気泡の特性	(12)
1.2.4 軸方向の混合特性	(13)
(a) スラリー気泡塔における軸方向の混合特性	(13)
(b) 3相流動層における軸方向の混合特性	(15)
1.2.5 半径方向の混合特性	(16)
1.3 物質移動特性	(17)
1.3.1 気液間物質移動と界面積	(17)
(a) 3相流動層における気液間物質移動と界面積	(17)
(b) スラリー気泡塔における気液間物質移動と界面積	(20)
1.3.2 粒子液間物質移動	(20)
1.3.3 壁面液間物質移動	(20)
1.4 伝熱特性	(21)
(a) 3相流動層における伝熱特性	(21)

(b) スラリー気泡塔における伝熱特性	(21)
1.5 本研究の目的と概要	(24)
第1編 気液固3相流動層における流動	
第2章 3相流動層およびスラリー気泡塔における各相の ホールドアップ	(27)
緒言	(27)
2.1 実験装置および方法	(27)
2.1.1 実験装置	(27)
2.1.2 気液固各相のホールドアップの測定法	(29)
2.2 実験結果および考察	(31)
2.2.1 気液固各相のホールドアップの軸方向分布	(31)
2.2.2 ガスホールドアップ ϵ_g の挙動	(36)
2.2.3 3相流動層の ϵ_g の相関	(38)
2.2.4 3相流動層における液ホールドアップ ϵ_l	(43)
2.2.5 3相流動層における粒子ホールドアップ ϵ_s	(44)
2.3 3相流動層およびスラリー気泡塔の流動モデル	(45)
2.3.1 モデルの展開	(45)
(a) 3相流動層の分散気泡流域に対してのモデル化	(46)
(b) 不均一気泡流域に対してのモデル化	(46)
2.3.2 モデルの実験データへの適用	(50)
(a) 濃厚粒子層中の粒子沈降速度 V_{zs}	(50)
(b) 希薄粒子層中の粒子沈降速度 V_{zs}	(53)
(c) 濃厚粒子層における液ホールドアップ ϵ_{lD} と 粒子ホールドアップ ϵ_{sD}	(54)

(d) 粒子混合拡散係数 E_{zs}	(56)
結言	(58)
第3章 スラリー気泡塔における気泡群の特性とガスホールドアップ	
緒言	(61)
3.1 実験装置および方法	(61)
3.1.1 実験装置	(61)
3.1.2 気泡特性値の測定方法	(64)
3.2 実験結果および考察	(65)
3.2.1 ガスホールドアップ ϵ_g と気泡頻度 n_b	(65)
3.2.2 気泡長さ L_b および気泡上昇速度 U_b の分布	(68)
(a) 気泡長さ L_b の分布	(68)
(b) 気泡上昇速度 U_b の分布	(69)
3.2.3 気泡群の挙動	(71)
3.2.4 体面積平均径 d_{vs} の挙動	(73)
3.2.5 体面積平均径 d_{vs} の相関	(78)
結言	(81)
第2編 気液固3相流動層における物質移動	
第4章 高濃度スラリー気泡塔における気液間物質移動	(82)
緒言	(82)
4.1 実験装置および方法	(82)
4.2 実験結果および考察	(83)
4.2.1 液相容量係数 k_1a の挙動と相関	(83)
4.2.2 気液界面積 a の挙動と相関	(89)

4.2.3 液側物質移動係数 k_l の挙動と相関	(92)
結 言	(95)
第5章 3相流動層における粒子液間物質移動	(96)
緒 言	(96)
5.1 実験装置および方法	(97)
5.2 実験結果および考察	(99)
5.2.1 粒子液間物質移動係数 k_s の半径方向分布	(99)
5.2.2 粒子液間物質移動係数 k_s の挙動	(101)
5.2.3 粒子液間物質移動係数 k_s の相関	(103)
5.2.4 3相流動層および気液上昇並流充填層の k_s に関する 既往の結果との比較	(110)
結 言	(111)
第6章 3相流動層における壁面液間物質移動	(112)
緒 言	(112)
6.1 実験装置および方法	(113)
6.2 実験結果および考察	(115)
6.2.1 壁面液間物質移動係数 k_w の軸方向分布	(115)
6.2.2 壁面液間物質移動係数 k_w の挙動	(117)
(a) 充填層の k_w の挙動	(117)
(b) 液固流動層の k_w の挙動	(117)
(c) 気液2相流および3相流動層の k_w の挙動	(120)
6.2.3 壁面液間物質移動係数 k_w の相関	(122)
結 言	(126)

第7章 3相流動層における壁面流動層間の伝熱	(127)
緒 言	(127)
7.1 実験装置および操作	(128)
7.2 解 析	(129)
7.2.1 総括伝熱係数 h_o の算出	(129)
7.2.2 半径方向の有効熱伝導度 k_{er} と 見かけの壁面伝熱係数 h_w の算出	(132)
7.3 実験結果および考察	(134)
7.3.1 総括伝熱係数 h_o の挙動と相関	(134)
(a) 層平均温度 T_m の軸方向分布	(134)
(b) 気液2相流および液固流動層における h_o の挙動と相関	(135)
(c) 3相流動層における h_o の挙動と相関	(137)
7.3.2 半径方向の有効熱伝導度 k_{er} と 見かけの壁面伝熱係数 h_w の挙動	(139)
(a) 半径方向の温度分布	(139)
(b) 気液2相流および液固流動層における k_{er} の挙動	(141)
(c) 3相流動層における k_{er} の挙動	(143)
(d) 気液2相流および液固流動層における h_w の挙動	(145)
(e) 3相流動層における h_w の挙動	(147)
7.3.3 見かけの壁面伝熱係数 h_w の相関	(148)
7.3.4 層内伝熱抵抗に関する一考察	(149)
7.4 h_w に及ぼす伝熱体の幾何学的因子の影響	(151)
結 言	(154)

第8章 3相流動層における半径方向の液混合	(155)
緒言	(155)
8.1 実験装置および解析	(155)
8.1.1 実験装置と操作	(155)
8.1.2 半径方向の液混合拡散係数 E_{rl} の算出法	(157)
8.2 実験結果および考察	(158)
8.2.1 半径方向の液混合拡散係数 E_{rl} と E_{rh} の挙動	(158)
(a) 液固流動層の液混合拡散係数 E_{rl} と E_{rh} の挙動	(158)
(b) 3相流動層の液混合拡散係数 E_{rl} と E_{rh} の挙動	(160)
8.2.3 半径方向の液混合拡散係数 E_{rl} と E_{rh} の相関	(162)
(a) 液固流動層の E_{rl} の相関	(162)
(b) 3相流動層の E_{rl} の相関	(166)
(c) E_{rh} の相関	(166)
結言	(167)
第9章 総括	(168)
Nomenclature	(171)
Literature cited	(179)
謝辞	(190)
本論文に関する著者の発表論文	(191)

第1章 緒論

はじめに

1つの容器内で気体・液体及び固体粒子の3つの相が同時に接触して反応に関与する系は、石油の水素化脱硫、石炭の液化、廃ガス処理や廃水処理など多方面のプロセスに応用されている。現在、工業的に用いられている気液固3相系接触装置は充填塔、攪拌槽、流動層、懸濁床など多様な装置形式をとっている。

しかし、これらの3相系接触装置は、気-液系、液-固系などの2相系接触装置と比較して、装置内の流動、伝熱、物質移動などの諸特性がさらに複雑で、各種形式の装置に関する合理的な設計及び運転のための資料は極めて不足している。

そこで、著者は3相系接触装置の中で、応用範囲が極めて広い3相流動層操作と懸濁床操作を取り上げ、それらの操作に関して、装置の設計及び運転のために必要な流動、物質移動及び伝熱の基礎的装置特性データの獲得と解析を行った。

本章ではまず、懸濁床を含んだ広い意味における3相流動層操作の概要と分類、及びそれらに関する既往の研究の概要とその問題点を述べる。次に、これを踏まえて本研究全体にわたって、個々のテーマに対する目的と概要を述べる。

1.1 気液固3相流動層の操作様式

気液固3相流動層は、広義に解釈すれば、直径数mm以下のほぼ粒の揃った固体粒子から成る層が、気体と液体の混相媒体の流動によって膨張し流動化する、もしくは懸濁化する状態として定義される。すなわち、固体粒子層の重力が流体の持つ浮力と流体流動によって生ずる抗力及び攪乱作用による流動化推進力の合力に釣り合ったとき、流動層が形成される。この3相流動層操作には、使用する粒子の大きさ、気体及び液体の流通方式などに幅広い選択が可能であり、気体、液体、固体の3つの相を含んだ各種の物理的、化学的あるいは生物学的プロセスへの応用が可能である。

この気液固3相流動層の操作は、気相と液相の流れ方向及び液流れと気体流れのどちらが粒子層の流動に支配的に働いているかによって、いくつかの様式に分類できる[E6,M15]。Muroyamaら[M15]の分類法によれば、気液固3相流動層は、Fig.1-1に示すような4つの操作様式に大別される。

まず、粒子の密度が液体の密度よりも大きい場合、

[I] 液相が連続相となり、その上昇流によって粒子を流動化させ、液相と並列に気相を分散相(気泡)として流通させる操作(Mode I-a)が実現する。

Mode	I-a	I-b	II-a	II-b
Schematic diagram of gas-liquid-solid fluidization				
Continuous phase	Liquid	Gas	Liquid	Gas
Flow direction	Concurrent upflow	Concurrent upflow	Countercurrent flow	Countercurrent flow
Solid density/Liquid density	> 1		< 1	

Fig.1-1 Modes of gas-liquid-solid fluidization[M15].

[2] しかし、大きな質量を持つ粒子を用いたMode I-a操作は、気相の流通速度を増大させることによって、遂には気相が連続相をなし、粒子層は気相の流通によって流動化され、液相は膜状あるいは滴状となって層内を上昇する操作(Mode I-b)に変化する。

次に、粒子の密度が液体の密度よりも小さい場合、液相は下降流で操作され、それと向流に気体を流通させる。この場合、気体の液体に対する流量比によって、

[3] 気液の流量比が小さい場合、液が連続相となり、液の下降流によって粒子が塔の下方方向へ膨張流動化する。一方、気体は気泡となって層内を上昇する様式の操作となる(Mode II-a)。この操作を一般に3相逆流層と呼んでいる。

[4] しかし、気液の流量比を大きくすると、Mode II-a操作は、液が連続相の状態から気体が連続相の状態へ移行する(Mode II-b)。Mode II-b操作の工業的応用には、ピンポン玉のような中空プラスチック球を気体の上昇流によって塔内に浮遊させ、液を塔頂から散布させるTCA (Turbulent bed contactor)がある。

このように気液固3相流動層操作には広範な形態が可能であるが、ここで大別した4つの操作様式のうちで、Mode I-a操作が最も広範囲に適用可能であり、その応用例も最も多い。例えば本操作は、石油の水素化分解・脱硫プロセスの1つであるH-oil法および石炭の液化反応プロセスの1つであるH-coal法の主反応器として用いられているほか、微生物膜付着粒子を用いた流動層水処理プロセスにも応用されている。このように通常、「3相流動層」の呼称はこのMode I-a操作で現れる操作形態を指す。そこで、本論文では3相流動層操作のうちこのMode I-a操作に研究範囲を絞った。

1. 1. 1 Mode I-a流動層操作の分類

Mode I-a型3相流動層操作は、使用する粒子の大きさ、あるいは、層内の気泡群の挙動から、さらにいくつかの操作形態に細分化される。

(a) 粒子径による分類

直径が約0.5mm以上の粒子を用いる場合、塔内の粒子濃度の軸方向分布は、Fig.1-2(a)に示すように、塔下部の粒子濃度が軸方向にはほぼ均一な濃厚粒子層と、その上部の塔頂に向かって粒子濃度が急激に減少する希薄粒子層とからなる形態をとるようになる。このような粒子濃度の軸方向分布が得られる流動層操作は、狭義に気液固3相流動層あるいは単に3相流動層と呼ばれている。この場合、固相は通常回分式で操作される。

一方、粒子の直径を小さくすると、遂には液中に分散した気泡の攪乱作用のみによっても、粒子層の分散流動化が可能となる。この操作は通常、懸濁気泡塔あるいはスラリー気泡塔と呼ばれている。スラリー気泡塔操作に用いられる粒子の直径は約0.5mm以下であり、粒子濃度の軸方向分布は、塔内の粒子量が多くなければ、Fig.1-2(b)に示すように塔頂に向かって指数関数的に減少する形態となる。この場合、固相を液相中に分散させたスラリーとして連続的に供給、排出させることも可能となり、この操作様式は特にスラリー輸送層と呼ばれている。

本論文においては、以後の各章において、「3相流動層」及び「スラリー気泡塔」の呼称を上で述べた狭義の意味に用いて、これらの呼称で操作形態が特定できるようにした。

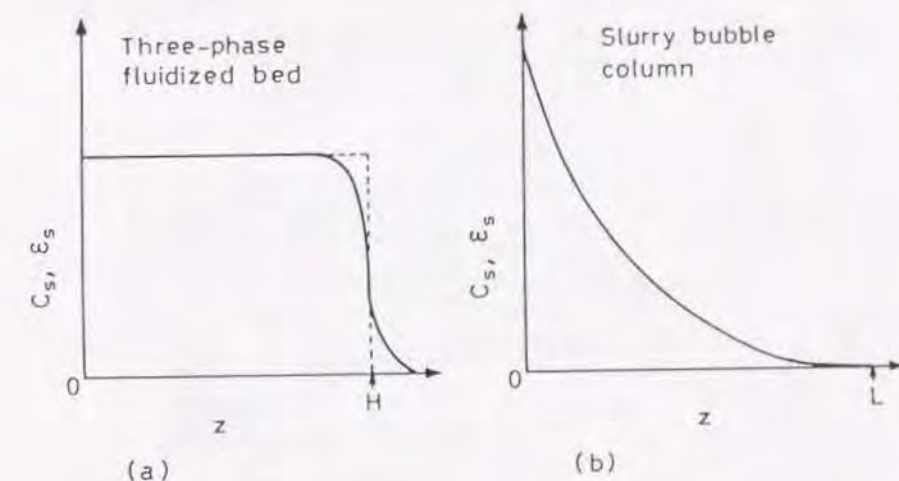


Fig.1-2 Axial variations of solid concentration (or solid holdup) for the Mode I-a fluidization.

Fanら[F4]は、上に挙げた各種操作様式を粒子終末沈降速度 V_t 対液空塔速度 U_l の関係をjいて、Fig.1-3に示すように分類した。図中の U_{mf} は流動化開始速度、 U_l' は気液混相媒体中の見かけの終末速度であり、気液混相の空隙率対 U_l のプロットを空隙率1まで外挿して得られる値である。これによると、スラリー気泡塔の操作領域は3相流動層やスラリー輸送層の操作領域を一部含んでおり、それらの境界は明確には存在しない。例えば、スラリー気泡塔と3相流動層の境界領域は、空気-水-ガラス球系では $V_t=3\sim7\text{cm/s}$ 、 $U_l=0.1\sim5\text{cm/s}$ の操作条件下、これを粒子径 d_p で表せば $d_p=0.2\sim0.5\text{mm}$ の範囲で現れることになる。

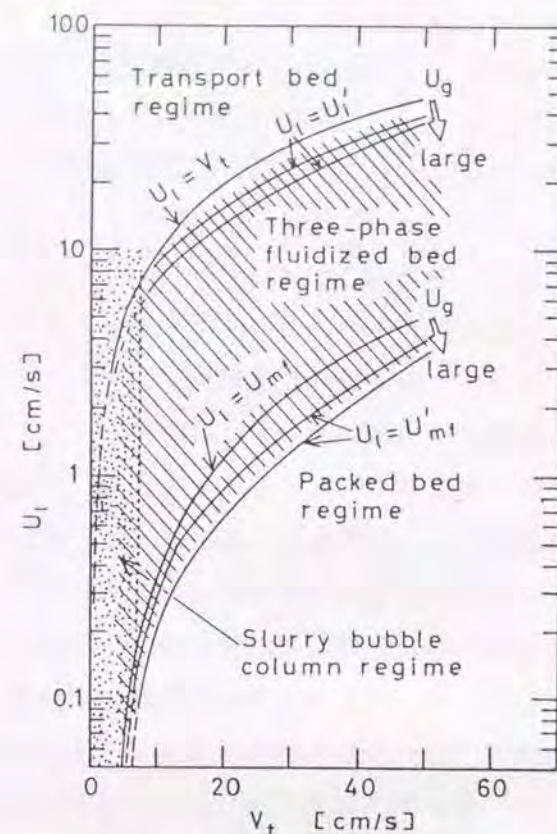


Fig.1-3 Operating regimes for the Mode I-a fluidization[F4].

(b) 気泡の状態による分類

3相流動層の気泡流動様式は、(1)均一気泡流、(2)不均一気泡流、および(3)スラグ流の3つに大別される。室山ら[M13]は、この分類を3相流動層に対して、Fig.1-4に示すように、

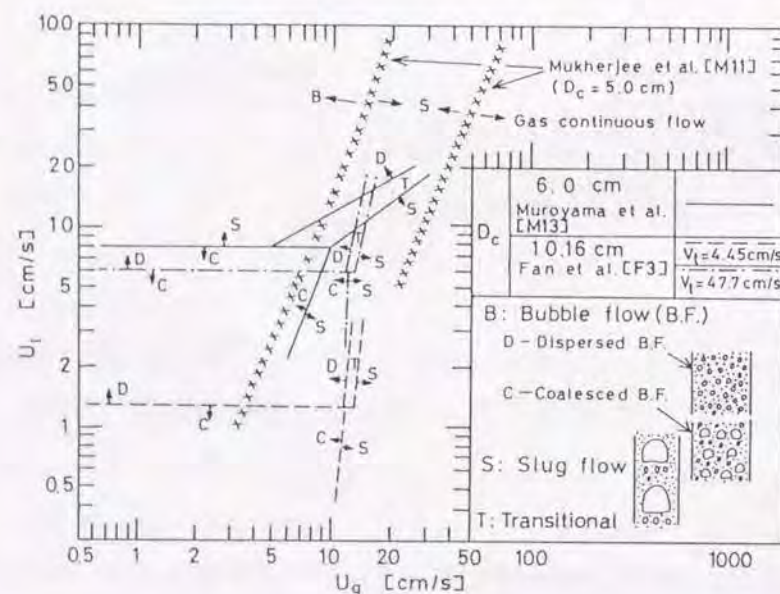


Fig.1-4 Flow regime diagram for three-phase fluidized beds[M15].

(1)分散気泡流、(2)合一気泡流、および(3)スラグ流の呼称で分類した。この図から、まず分散気泡流は、大粒子を用い高 U_l 域でかつガス空塔速度 U_g の低領域で操作した場合に現れる。気泡は大きさが均一な多数の小気泡群となって層内を上昇する。気液界面は安定しており、気泡の形状は球または回転楕円体に近い。次に合一気泡流は、小粒子を用いた場合、あるいは大粒子を用いた場合でも低 U_l で操作したときに現れる。気泡は少数の大気泡と、多数の小気泡とから成り、大気泡は小気泡群中を高速で通過する。そのため気泡の合一と分裂が繰り返され液体及び固体粒子は激しく攪乱される。さらに、小規模の塔を用いた場合、これらの均一気泡流及び合一気泡流の状態は、 U_g を増大させると気泡の合体が急激に進行し、塔径規模まで拡大した大気泡が断続的に発生し高速で上昇するようになり、スラグ流へ移行する。

一方、スラリー気泡塔の流動様式も気泡流動パターンから3つに分類される。Deckwerら[D7]はFig.1-5に示すように、各流動域の境界を U_g と塔径 D_c の関係として表した。この図から、スラグ流は $D_c < 15\text{cm}$ の小規模な塔の場合にのみ現れることがわかる。しかし、スラリー気泡塔における流動様式は U_g 、 D_c の他に粒子濃度（或はスラリーの粘度）及びガス分散器の形状などによっても影響される。スラリー気泡塔操作において、Deckwerら[D7]の流動様式区分図が適用できるのは、粒子濃度が小さく、しかも多孔構造のガス分散器を使用したときのみである。ガス分散器に単孔のガス分散器を用いれば、小さい U_g でも気泡の合一が生じて不均一気泡流となり易い。また、粒子濃度を増大させても気泡の合一が生じ易くなる。

以上、気液固3相流動層操作に関して操作形態ならびに流動様式の概要を述べた。次に、以下の三つの節において、3相流動層操作ならびにスラリー気泡塔操作における流動、物質移動、および伝熱に関する既往の研究の概要を述べ、本研究で検討すべき問題点を明らかにする。

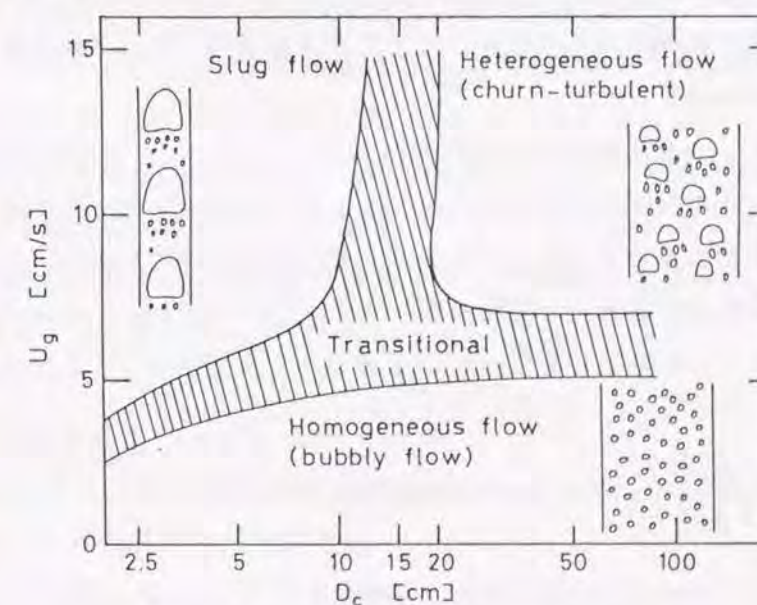


Fig.1-5 Flow regime diagram for slurry bubble columns[D7].

1. 2. 1 ホールドアップ

(a) 3相流動層のホールドアップ

3相流動層反応器の模式図をFig.1-6に示す。本反応器は気液分散器及び流動化部の2つのセクションから構成される。流動化部は流動層本体、固液分離部(Disengagement zone)及び気液2相部の3つのゾーンに分割できる。ここで固液分離部は、流動層本体から気液2相部へ飛散した粒子がそれ自身の重力によって再び流動層本体へ戻る遷移域である。

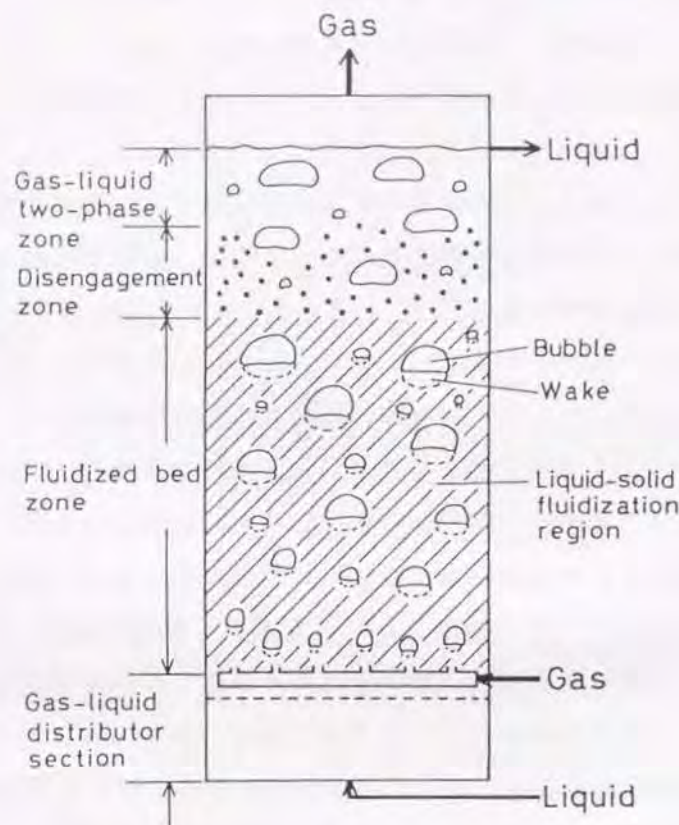


Fig.1-6 Schematic representation of the 3-phase fluidized bed reactor.

液固流動層に気体を吹き込み、3相流動層を形成させたとき、流動層本体は膨張または収縮する。このうち収縮現象を説明するためにウェイクモデルが提案され、これに基づいたホールドアップの相関式が多数報告された。

ウェイクモデルでは、3相流動層本体を(1)気泡領域、(2)ウェイク領域、(3)液固流動層領域の3つに分割し、ウェイクは気泡後部に合体したまま液固流動層中を上昇すると仮定した。ウェイクモデルを図式化したものをFig.1-7に示す。Bhatiaら[B4]によると、ウェイクは固体粒子を含み、液固流動層における液相と固相の相対速度は、Richardson-Zaki[R4]の式を用いて表されるとしている。これらの仮定に基づいて ϵ_l を推定する次式が得られる[B4]。

$$\epsilon_l = \left[\frac{U_l - U_g k(1-x)}{U_i(1-\epsilon_g - k\epsilon_g)} \right]^{1/n} \{1 - \epsilon_g(1+k-kx)\} + \epsilon_g k(1-x) \quad (1-1)$$

ここで、 $k = \epsilon_w / \epsilon_g$ 、 $x = \epsilon_{sw} / \epsilon_{sf}$ である。 ϵ_g の値と共に未知パラメータ k および x の値を推定する必要がある。この k および x を推定する式のうち、代表的なものをTable 1-1に示

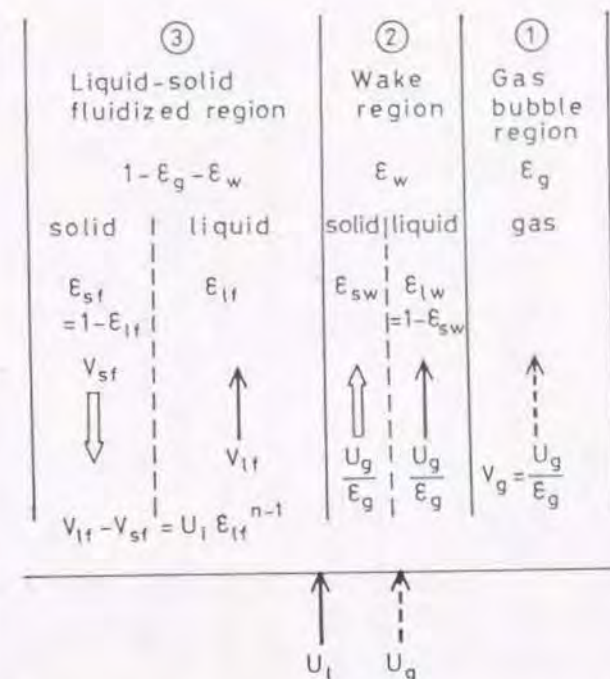


Fig.1-7 The generalized wake model for the three-phase fluidized bed reactor.

す。これより k および x の値は、種々の仮定の下に導出されていることが分かる。しかも今日なお、群として存在している層内の気泡のウェイクの実態に対する実験的検証は十分になされていない。また、高 U_g 域でみられる気泡群の激しい合一と分裂が繰り返されている条件下では、ウェイクが形成されているかどうか疑わしいと考えられる。

一方、ウェイクモデルによらずに3相流動層のホールドアップを推定する実験式も多数報告されている。これらのうち、気液固の比較的広い操作範囲にわたって適用できる代表的なものをTable 1-2に示す。しかし、3相流動層の ϵ_g は気泡流動様式の変化に対応して複雑な挙動を示すが、これをうまく表す相関式はまだ得られていない。

Dartonら[D4]は、Wallis[W2]が気液2相流で展開したドリフト-フラックスモデルを3相流動層に応用し、3相流動層におけるドリフト-フラックス V_D 対 ϵ_g の線図を用いて ϵ_g を推定する方法を提案した。彼らの方法は3相流動層の ϵ_g の挙動を特徴的に捉えているが、図解法に頼らなければならない点に煩わしさが残る。

(b) スラリー気泡塔のホールドアップ

スラリー気泡塔における ϵ_s は、軸方向に分布を持つ。この ϵ_s の挙動は、軸方向の混合現象と密接に関係しているので後の節で述べる。

次に、スラリー気泡塔の ϵ_g に対する気液固の各操作因子の影響は、3相流動層の場合と比較して大きく異なる。まず、スラリー気泡塔における U_l の操作域は高々数cm/sまでの範囲にあるため(Fig.1-3参照)、 ϵ_g に対する U_l の影響は小さい。また、粒子濃度 C_s の増大は気泡径の増

Table 1-1 Correlations of phase holdups based on the wake models

Investigators	Correlation equation for k	Assumption for x	Liquid-solid interrelation and gas-liquid interrelation
Bhatia and Epstein (1974) [B4]	$k=k_0'(1-\epsilon_g)^3$ According to El-temtamy and Epstein (1978) [E2] $k_0'=(0.61+0.037/(\epsilon_g+0.013))$	$0 \leq x \leq 1$ adjustable parameter	Richardson and Zaki equation Large columns; $U_g/\epsilon_g - U_l/\epsilon_l = U_{b0} + 2U_g$ Smaller columns; $U_g/\epsilon_g - U_l/\epsilon_l = U_{b0} \sqrt{\tanh(0.25\epsilon_g^{-1/3})}/\epsilon_l$ (bubble flow) $U_g/\epsilon_g - U_l/\epsilon_l = (0.2(U_g + U_l) + 0.35\sqrt{gD_c})/\epsilon_l$ (slug flow)
Darton and Harrison (1975) [D4]	$k=1.4(U_l/U_g)^{0.33}-1$, for $U_l/U_g \geq 0.4$ $k=0$, for $U_l/U_g < 0.4$	$x=0$	Richardson and Zaki equation $U_g(1-\epsilon_g) - U_l\epsilon_g(1-\epsilon_g)/\epsilon_l = f(\epsilon_g, U_{b0})$ $f(\epsilon_g, U_{b0}) = 180\epsilon_g$ (uniform bubbling regime) Graphical presentation (churn-turbulent regime)
El-temtamy and Epstein (1978) [E2]	$k=k_0 \exp(-5.08\epsilon_g)$ k_0 : relative wake holdup for single bubbles	$x=1-0.877y$, for $0 \leq y \leq 1.14$ $x=0$, for $y > 1.14$ where $y=U_l/(U_g/\epsilon_g - U_l/\epsilon_l)$	Richardson and Zaki equation Measured ϵ_g

Table 1-2 Empirical correlations of phase holdups for Mode I-a fluidization

Investigators	Correlation equation	Gas/Liquid	Solid	Column diameter
Dakshinamurthy et al. (1971) [D1]	$\epsilon = (\epsilon_g + \epsilon_l) = k'(U_l/V_t)^{m'} (U_g \mu_l / \gamma_l)^{n'}$ $n'=0.08$ $k'=2.12$, $m'=0.41$ for $Re_t < 500$ $k'=2.65$, $m'=0.60$ for $Re_t > 500$	air/water air/kerosene	rockwool shot (1.3 mm) sand (1.06 and 2.235 mm) glass beads (0.335, 4.89 and 6.84 mm) iron shot (3 mm)	56 mm
Kim et al. (1975) [K15]	$(\epsilon_g + \epsilon_l) = 1.40 Fr_l^{0.170} (U_g \mu_l / \gamma_l)^{0.078}$ for expanded beds $(\epsilon_g + \epsilon_l) = 1.301 Fr_l^{0.128} (U_g \mu_l / \gamma_l)^{0.073}$ $\times \exp(0.031(U_l/U_g)(\epsilon_l)_{U_g=0})$ for contracted beds $(\epsilon_l)_{U_g=0} = 1.353 Fr_l^{0.206} Re_l^{-0.100}$ $\epsilon_l = 1.504 Fr_l^{0.234} Fr_g^{-0.086} Re_l^{-0.082} (U_g \mu_l / \gamma_l)^{0.092}$ where $Fr_l = U_l^2 / (d_p g)$, $Fr_g = U_g^2 / (d_p g)$, $\mu_l = k / (du/dy)^{1-n}$ and $Re_l = U_l^{2-n} d_p^n / \nu_l$	air/sugar soln. air/CMC soln. air/water-acetone	glass beads (6 mm) irregular gravel (2.6 mm)	660.4 x 25.4 mm rectangular cross section column
Begovich and Watson (1978) [B2]	$(\epsilon_g + \epsilon_l) = 0.371 U_l^{0.271} U_g^{0.041} (\rho_s - \rho_l)^{-0.316}$ $\times d_p^{-0.268} \mu_l^{0.055} D_c^{-0.033}$ $\epsilon_g = 0.048 U_g^{0.72} d_p^{0.168} D_c^{-0.125}$ Units: $U_l = \text{cm/s}$, $U_g = \text{cm/s}$, ρ_s and $\rho_l = \text{g/cm}^3$, $d_p = \text{cm}$, $D_c = \text{cm}$ and $\mu_l = \text{g/(cm s)}$	air/water	alumina beads (6.2 mm) glass beads (4.6 and 6.2 mm) alumino-silicate (1.9 mm) Plexiglass (6.3 mm)	76.2 and 152 mm

Table 1-2 (Continued)

Investigators	Correlation equation	Gas/Liquid	Solid	Column diameter
Kato et al. (1981) [K7]	$U_1/V_t = (\epsilon_1/\epsilon_1^*)^n$ $\text{where } \epsilon_1^* = 1 - 9.7(350 + Re_t)^{1.1} - 0.5(\rho_1 U_g^4 / (\epsilon_1 \gamma_1))^{0.092}$ $[5.1 + 86.2(\rho_1 U_g^4 / (\epsilon_1 \gamma_1))^{0.285 - n}] / (n - 2.7)$ $= [0.1 + 0.443(\rho_1 U_g^4 / (\epsilon_1 \gamma_1))^{0.165}] Re_t^{0.9}$	air/water air/CMC soln.	glass beads (0.42, 0.66, 1.2 and 2.2 mm)	52 and 120 mm
Kato et al. (1985) [K10]	$\epsilon_{gL} = 0.3w^{1.3} / (1 + 1.1w^{1.15})$ $\epsilon = \epsilon_{gL} / (1 + 0.01Re_t^{0.62})$ $\text{where } w = (gD_c^2 \rho_1 / \gamma_1)^{0.198} (gD_c^3 / \nu_1^2)^{0.035} (U_g / \sqrt{gD_c})$ $\epsilon_{SD} = \epsilon_{SD}^* [1 - 1.09 \{ (1 + 0.00124Re_t^{0.8}) U_1 / V_t \}^{0.85}]$ $\text{where } \epsilon_{SD}^* = \epsilon_s \text{ in the completely settled bed}$ <p>Subscripts L=lean region, D=dense region</p>	air/water air/slurry (water + alumina catalyst)	glass beads (0.52, 2.2 and 5.2 mm) porous alumina beads (1.8 mm)	120 mm
Koide et al. (1984) [K12]	$\frac{\epsilon_g}{(1 - \epsilon_g)^4} = \frac{U_1 \mu_1 (0.918 (\frac{g \mu_1}{\rho_1})^{0.252} - 0.277 (\frac{g \mu_1}{\rho_1})^{0.918})}{1 + 4.35 (\frac{\rho_s}{\rho_g})^{0.748} (\frac{\rho_s - \rho_1}{\rho_1})^{0.881} (\frac{D U_1 \rho_1}{c_g \rho_1}) - 0.168 \frac{D U_1 \rho_1}{\mu_1}}$	air/water air/glycerol aq. soln. air/glycol aq. soln. air/sodium sulfate aq. soln.	glass beads (0.0475- 0.192 mm, 4 kinds) bronze beads (0.081 mm)	100, 140, 218 and 300 mm

大を引き起こすので ϵ_g を減少させる [K4, K21]。

Koideら [K21] は、直径 $40 \mu\text{m}$ 以上の粒子を用いたスラリー気泡塔における ϵ_g を、塔径及び気液固各相の操作条件を広範囲に変化させて測定し、不均一気泡流動域及び遷移域に対してそれぞれ ϵ_g を相関する実験式を提出した。それらのうちの不均一気泡流動域についてのものを、Table 1-2 の 3 相流動層操作における研究報告の後に続けて示す。直径 $40 \mu\text{m}$ 以下の極微小粒子を用いたスラリー気泡塔においては、スラリーを擬均一流体 (Pseudo-homogeneous fluid) と見なし、スラリーのみかけの粘度を用いて ϵ_g を相関する方法が一般に用いられる [C1, G2, G3, Q1, S4]。

これまで、3 相流動層とスラリー気泡塔別々に気液固各相のホールドアップの挙動を見てきた。ところで、スラリー気泡塔操作において、大量の固体粒子を装置内に供給することによって、3 相流動層に類似した層状態が出現する。しかし、この領域におけるホールドアップの挙動は、ほとんど調べられていない。

1. 2. 2 臨界粒子濃度

液固回分式スラリー気泡塔では、ある通気速度に対して限られた固体粒子量しか完全に懸濁させることが出来ず、それ以上の粒子量が存在する場合には、塔底に未懸濁状態にある堆積層が生じる。この完全に懸濁させることの出来る塔平均粒子濃度の最大値を臨界粒子濃度 (Critical solid concentration) といい、そのときのガス空塔速度を臨界ガス流速 (Critical gas velocity) という。臨界粒子濃度 C_{sc}^* と臨界ガス流速 U_{gc}^* の関係については多くの研究が行われてきた [K2, K20, K22, N1, N4,

R6]。Fig. 1-8 に小島 [K23] や室山 [M14] によってまとめられた C_{sc}^* 対 U_{gc}^* の関係に関する既往の研究報告の比較を示す。この図から既往の C_{sc}^* データには相当に大きい差異が認められる。この原因として、装置の幾何学的因子、特に塔底部の構造が C_{sc}^* に大きく影響していること、及び C_{sc}^* の決定法が各研究者間で必ずしも一致しているとは言えないことが挙げられる。

液固回分式スラリー気泡塔にお

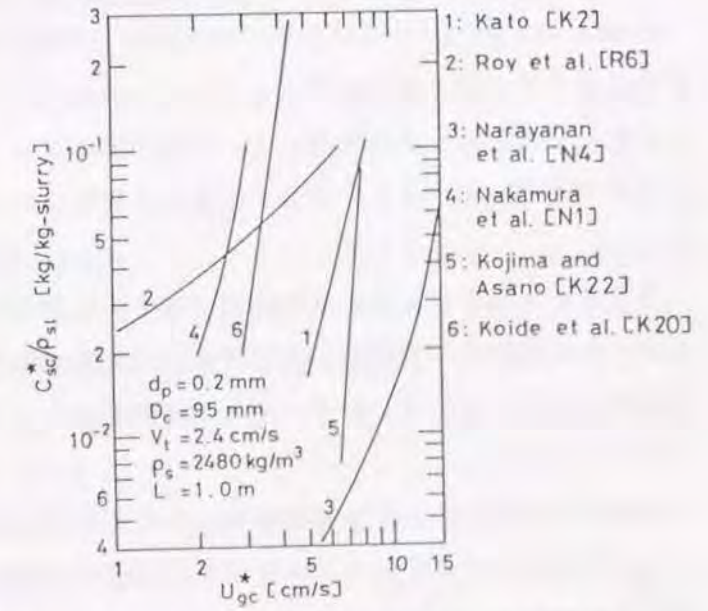


Fig. 1-8 Comparison of correlations for critical gas velocity vs. critical solid concentration [K23, M14].

における C_{sc}^* 対 U_{gc}^* の関係は、上に述べたように研究者によって異なったものとなっている。しかし、 $U_g < 2 \text{ cm/s}$ では粒子をほとんど懸濁させることが出来ないこと、及び C_{sc}^* を容積分率に換算した値が高々10%程度までしか、粒子を完全に懸濁させることが出来ないこと等が、共通した結果として得られている。

1. 2. 3 気泡の特性

Henriksenら[H6]は2次元液固流動層中を上昇する単一気泡の挙動を調べ、気泡上昇速度 U_b とキノコ笠状気泡の曲率半径 R との間には、次式で示される Davies-Taylor[D5]型の関係が成立することを見いだした。

$$U_b = K \sqrt{gR} \quad (1-2)$$

Dartonら[D3]は、単一気泡が液固流動層中及び粒子のない液のみの層中を上昇するときの気泡周りの抵抗係数 C_D を求めた。その結果、微小球形気泡の C_D は、気泡が液中よりも流動層中を上昇する場合の方が大きい、キノコ笠状の気泡の C_D は流動層中と液中とではほぼ同じ大きさである、と報告した。El-temtamyら[E5]はDartonら[D3]の気泡データを再整理し、キノコ笠状の気泡の U_b は R を用いれば、やはり Davies-Taylor[D5]型の式で表せるとした。

Leeら[L1]は直径0.39~5.9mmの種々の粒子を用い、3相流動層における気泡群の平均気泡径を測定し、気泡径は粒子径の増大あるいは層空隙率の増大によって減少することを示した。Kimら[K16]は3相流動層中の気泡群の平均気泡径と気泡上昇速度を測定し、これらの気泡特性値を気液の流速の他に液の粘度や表面張力を用いて相関した。

Matsuuraら[M2]は3相流動層中の気泡群の特性を電気探針法を用いて測定し、気泡径分布は対数正規分布に従う結果を得た。さらに、これらの気泡群の特性は流動様式に大きく依存することを見いだした。すなわち、合一気泡流及びスラグ流では平均気泡径は大きく、気泡径分布の分散も大きい。一方、分散気泡流では平均気泡径は小さく気泡径分布の分散も小さい。

スラリー気泡塔における気泡特性に関する研究は極めて少ない。Kojimaら[K22]は液固回分式スラリー気泡塔の体面積平均気泡径 d_{vs} を写真撮影法を用いて測定した。しかし、写真撮影法は極めて低粒子濃度でしか用いることが出来ないため、気泡径と粒子濃度との定量的な関係はつかめていない。

以上述べたように、3相流動層における気泡群の挙動は、かなり明らかになってきたが、スラリー気泡塔、およびスラリー気泡塔と3相流動層の境界領域における気泡群の挙動は、ほとんど明らかにされていない。

1. 2. 4 軸方向の混合特性

3相流動層やスラリー気泡塔の混合特性を評価する場合、気相に対しては一般に押し流れが仮定される。しかし、液相や固相に対しては軸方向の逆混合現象を考慮する必要がある。

(a) スラリー気泡塔における軸方向の混合特性

直径40~500 μm の範囲の粒子を通気によって完全に懸濁させた場合、塔内の粒子濃度（あるいは ε_s ）は、Fig.1-2(b)に示したごとく塔頂に向かって指数関数的に減少する。この粒子濃度の軸方向分布は、菅沼ら[S11]、Cova[C7]、Katoら[K5]など多くの研究者によって沈降拡散モデルを用いて解析された。沈降拡散モデル理論の骨子は、塔内の粒子の運動を、気泡の通過の結果生ずる液の乱流拡散による粒子の分散作用と、粒子自身の重力による沈降作用とによって表すことにある。定常状態において、本モデルに基づいて得られた塔内の粒子濃度を表す基礎式は、次式となる。

$$C_s = \left(C_{s1} + \frac{V_1}{V_{zs} - V_1} C_s^* \right) \exp \left\{ - \frac{(V_{zs} - V_1)(L - z)}{E_{zs}} \right\} - \frac{V_1}{V_{zs} - V_1} C_s^* \quad (1-3a)$$

または

$$C_s = \left(C_{s0} + \frac{V_1}{V_{zs} - V_1} C_s^* \right) \exp \left\{ - \frac{(V_{zs} - V_1)z}{E_{zs}} \right\} - \frac{V_1}{V_{zs} - V_1} C_s^* \quad (1-3b)$$

ここで、 C_{s0} ：塔底における粒子濃度、 C_{s1} ：塔頂における粒子濃度、 C_s^* ：供給スラリー中の粒子濃度、 V_{zs} ：粒子の沈降速度、 V_1 ：液の線速度、 E_{zs} ：粒子の軸方向混合拡散係数および L ：塔高である。

Eq.(1-3)中の未知パラメータは V_{zs} 、 E_{zs} および C_{s0} (または C_{s1}) である。これらの沈降拡散モデルパラメータは多くの研究者によって報告されてきたが、それらのうち代表的な相関式あるいは推定法をTable 1-3に示す。これらの研究結果を総括すると、以下の3点に要約できる。

- (1) V_{zs} の値に関して： 単一粒子の終末沈降速度を用いてよいとする報告[C7, K22]と粒子濃度とガス流速を考慮にいれて求める必要があるとする報告[I2, K5, S9]の2つに大別できる。
- (2) E_{zs} の値に関して： 粒子の存在しない気泡塔の液混合拡散係数 E_{z1} と同じとして良いとする報告[C7, I2]と、粒子の物理的特性(d_p と V_t)を考慮にいれて求める必要があるとする報告[K5, S9]に大別できる。
- (3) C_{s0} の値に関して： 1. 2. 2 で述べた臨界粒子濃度の結果とも対応して、沈降拡散モデルによって解析可能な塔底部の粒子濃度は、容積分率すなわち ε_{s0} にして20~30%までであるということが共通して言える。これ以上の濃度では塔底部に高濃度粒子層が形成され、沈降拡散モデルは適用不可能となる。

Table 1-3 Correlations of sedimentation-diffusion model parameters for slurry bubble columns

Investigators	Estimations and Correlations	Gas/Liquid	Solid	Column diameter
Suganuma and Yamanishi (1966) [S11]	$(V_{zs} - V_t) d_p / E_{zi} = 2.8 (V_t + V_l / U_g)^{-1.6}$ $\times (D_c U_g / V_t)^{-1.5} (d_p V_t / V_l)^{1.8}$	H ₂ , N ₂ , propane/ water, glycerol aq. soln.	sea sand (0.0895 and 0.126 mm) alumina (0.0405 mm)	60, 118 and 201 mm
Cova (1966) [C7]	$V_{zs} = V_t$ $E_{zi} = E_{zi}$ in bubble column without solid	air/ water, acetone	Raney nickel catalyst (0.0157 mm)	45.7 mm
Imafuku et al. (1968) [I2]	$V_{zs} = 1.45 V_t^{0.65} \exp(-4.65 \bar{\phi}_1)$ $E_{zi} = E_{zi}$ in bubble column without solid	air/water air/glycerol aq. soln.	glass beads (0.0642-0.180 mm, 4 kinds) ion exchange resin (0.110 mm) FeSiO ₂ powder (0.0735 mm) Cu powder (0.064 mm)	50, 100 and 200 mm
Kato et al. (1972) [K5]	$U_g D_c E_{zi} = 13 U_g / \sqrt{g D_c} (1 + 0.009 (d_p V_t / V_l) (U_g / \sqrt{g D_c})^{-0.8})$ $\times (1 + 8 (U_g / \sqrt{g D_c})^{0.85})$ $U_g D_c / E_{zi} = 13 U_g / \sqrt{g D_c} / (1 + 8 (U_g / \sqrt{g D_c})^{0.85})$ $V_{zs} = 1.33 V_t (U_g / V_t)^{0.25} \bar{\phi}_1^{2.5}, C_{s1} / C_s^* = 1 + 0.5 (U_g / V_t)^{-0.4}$	air/water	glass beads (0.063-0.177 mm, 5 kinds)	66, 122 and 214 mm
Kojima and Asano (1980) [K22]	$V_{zs} = V_t$ $U_g D_c / E_{zi} = 6.4 (U_g / \sqrt{g D_c})^{0.76}$	air/water air/glycerol aq. soln.	glass beads (0.105-0.500 mm, 3 kinds)	55 and 95 mm
Smith et al. (1985) [S9]	$U_g D_c / E_{zi} = 9.6 (U_g / \sqrt{g D_c})^6 / (U_g D_c / V_t)^{0.1114}$ $+ 0.019 (d_p V_t / V_l)^{1.1}$ $V_{zs} = 1.10 U_g^{0.026} V_t^{0.80} \bar{\phi}_1^{3.5}, C_{s1} = 1.27 C_s^*$	N ₂ /water N ₂ /ethanol	glass beads (0.044-0.210 mm, 3 kinds)	108 mm

スラリー気泡塔における液相の軸方向混合拡散係数 E_{zi} は Kato ら [K5] によって求められている。これによると、スラリー気泡塔の E_{zi} は、粒子を含まない気泡塔の E_{zi} と比較して、低ガス流速域で若干小さい値を示すことを除いて、ほとんど同一とおける。

(b) 3相流動層における軸方向の混合特性

3相流動層における液相の軸方向混合特性に関しては多くの研究が行われてきた [E3, K11, K17, M5, M13, O6]。Michelsen ら [M5] は、液相の軸方向混合は、分散気泡流域では小さく、合一気泡流及びスラグ流域では大きいことを報告した。室山ら [M13] も3相流動層における E_{zi} を測定し、Michelsen ら [M5] と同様な混合係数の挙動を得た。さらに室山ら [M13] は、得られた E_{zi} を Michelsen ら [M5] のデータから計算した E_{zi} も含めて、3相流動層の各流動様式毎に次式によって相関した。

合一気泡流、スラグ流に対して、

$$P e' = (V_l D_c / E_{zi}) = 1.07 U_l^{0.738} U_g^{-0.167} D_c^{-0.583} \quad (1-4)$$

分散気泡流に対して、

$$P e' = 26 (d_p / D_c)^{1/2} \quad (1-5)$$

ここで、 U_g 、 U_l の単位は cm/s、 D_c 、 d_p の単位は cm である。この結果より E_{zi} は D_c の 1.5 ~ 1.6 乗に比例して増大することがわかる。Ostergaard [O6] も室山ら [M13] と同様な E_{zi} の D_c 依存性を報告した。

Kim ら [K17] も3相流動層の E_{zi} の測定を行い、これに既往の E_{zi} データを含め次式によって相関した。

$$\frac{d_p U_l}{E_{zi}} = 20.19 \left(\frac{d_p}{D_c} \right)^{1.66} \left(\frac{U_l}{U_l + U_g} \right)^{1.03} \quad (1-6)$$

Kato ら [K11] もまた3相流動層の E_{zi} を測定し、3相流動層の E_{zi} は、気泡塔の E_{zi} の相関式 [K3] を修正することによって表すことが出来るとした。

以上述べた種々の E_{zi} の相関式による推算結果を Fig.1-9 に示す。 E_{zi} の測定には誤差を生じ易く、 E_{zi} の測定精度は比較的低い。他方、後の章で使用するようになるが、混合拡散モデルを用いて物質移動特性あるいは伝熱特性を算出する場合、これらの輸送特性値に及ぼす E_{zi} の推定誤差の影響は比較的小さい。以上のことを考慮すれば、Fig.1-9 に示した各研究者の E_{zi}

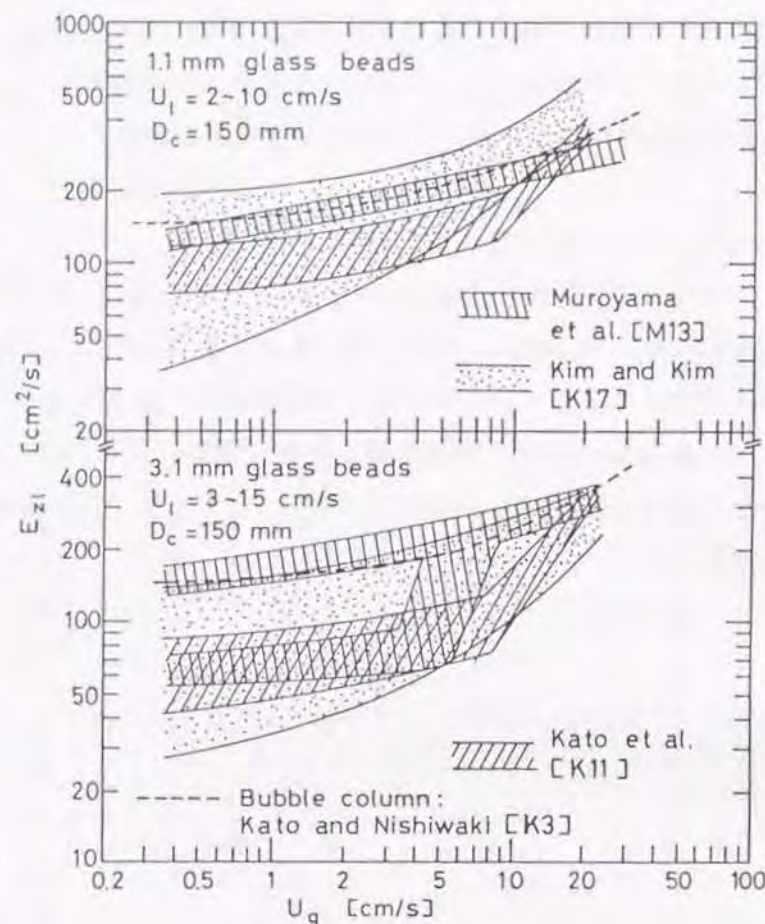


Fig.1-9 Variation of axial dispersion coefficient of liquid with gas velocity in a three-phase fluidized bed.

の相関式は、どれも実用上十分な精度を有すると言える。

3相流動層の粒子混合特性に関する研究は極めて少ない[F2, K10]。Fanら[F2]は直径の異なる2種の粒子を混合させた3相流動層における粒子混合特性を調べた。Katoら[K10]は、3相流動層の希薄粒子層部(すなわち固液分離部)の ϵ_s の軸方向分布を沈降拡散モデルを用いて解析し E_{zs} を求めた。これによると、希薄粒子層部の E_{zs} はスラリー気泡塔の E_{zl} と比較して低 U_g 域で約30~40%小さい値であるが、 U_g の増大と共に E_{zl} に急速に接近する。

1. 2. 5 半径方向の混合特性

半径方向の混合特性値は層中心部の伝熱現象を解明する上で重要である。一般にスラリー気泡塔における半径方向の液混合及び粒子混合は、層内の激しい攪乱作用のため、多くの場合において完全混合と見なせる。

一方、3相流動層の半径方向の液混合拡散係数 E_{rl} は E_{zl} と同様に気泡流動様式の影響を受

けると考えられるが、 E_{rl} に関する研究にはEl-temtamyら[E4]や Kangら[K1]の報告があるのみであり、 E_{rl} と流動様式との関係は明らかにされていない。さらに、半径方向の混合現象と伝熱現象を結び付けて検討した研究は行われていない。

1. 3 物質移動特性

気液固3相接触装置の物質移動抵抗は、気-液間、液-固間などに細分化された素単位の物質移動抵抗が直列に組合わさった1つの総括的なものと考えることが出来る。従って、各段階における物質移動の抵抗を正確に予測することが装置設計上極めて重要となる。

例えば、3相流動層が固体触媒反応器として使用される場合、気相中の反応成分は液相中に溶解し触媒粒子表面へ向かって拡散しなければならない。もし触媒活性が高ければ、気液間物質移動抵抗や固液間物質移動抵抗を低減させることによって、総括反応速度を大きく増大させることが可能となる。さらには3相流動層が電気化学的反応器として使用されるならば、塔壁あるいは層内挿入物表面が電極として用いられるから、壁面物質移動特性に関する知見が必要となる。

1. 3. 1 気液間物質移動と界面積

3相流動層及びスラリー気泡塔の気液間物質移動に関する研究は活発に行われてきた。それらのうちの代表的なものをTable 1-4に示す。

(a) 3相流動層における気液間物質移動と界面積

Ostergaardら[O5]は、3相流動層の液相容量係数 k_1a を測定し、以下の知見を得た。直径6mmのガラス球を用いた3相流動層の k_1a は粒子を含まない気泡塔の k_1a の約2倍の値を示すが、直径1mmのガラス球を用いた3相流動層の k_1a は逆に気泡塔の k_1a の約1/4~1/5の値であった。いずれの操作における k_1a もガス流速の増大と共に増大する。Ostergaardら[O5]の研究以降も、3相流動層の k_1a に関する研究は活発に行われてきたが、それらのほとんどにおいてOstergaardらと同様な結果が得られている。Dhanukaら[D10]は、3相流動層における k_1a 及び気液界面積 a を測定し、液側物質移動係数 k_1 を k_1a 及び a から求めた。それによると、 a は d_p 或は U_g の増大と共に大きく増大するが、 k_1 は d_p 或は U_g にあまり依存しない。従って、 k_1a の d_p 及び U_g への依存性は、主に a の変化に起因していることが判明した。

Alvarez-Quencaら[A4]は、押出し流れモデルを用いて3相流動層の k_1a の軸方向分布を求めた。その結果、グリッド帯と呼ばれるガス分散器直上の物質移動速度が非常に大きい領域と、グリッド帯の上部にあって k_1a がグリッド帯のそれよりも小さく、しかも軸方向距離の増大と共に減少する流動層本体領域の2つの領域があることを示した。しかし、Deckwerら[D8]は、

Table 1-4 Gas-liquid mass transfer studies on three-phase fluidized beds and slurry bubble columns.

Investigators	Gas/Liquid system	Solid	Column diameter	Correlations or remarks
Ostergaard and Suchozebrski (1969) [05]	Physical absorption: CO ₂ -N ₂ /water	glass beads (1 and 6 mm)	152.4 mm	Graphical description: very high mass transfer rate for the bed of 6 mm particles
Dhanuka and Stepanek (1980) [D10]	Chemical absorption-desorption: CO ₂ or N ₂ /Na ₂ CO ₃ -NaHCO ₃ buffer solution	glass beads (1.98, 4.08 and 5.86 mm)	50 mm	<p>Bed of 1.98 mm beads:</p> $k_1a = 2.37 \times 10^{-3} U_g^{1.0} U_1^{0.45}$ (for pure CO ₂) $k_1a = 3.25 \times 10^{-3} U_g^{1.0} U_1^{0.55}$ (for pure N ₂) $a = 0.232 U_g^{0.677} U_1^{0.534}$, $k_1 = 0.8118 \times 10^{-3} U_g^{0.4077}$ <p>Bed of 4.08 mm beads</p> $k_1a = 3.41 \times 10^{-2} U_g^{0.555}$ $a = 1.05 U_g$, $k_1 \times 10^2 = 2.355 - 0.1045 U_g$ <p>Bed of 5.86 mm beads:</p> $k_1a = 2.52 \times 10^{-2} U_g$ $a = 1.8 U_g$, $k_1 = 0.24 Sc^{-2/3} / (Ev_1)^{1/4}$ <p>Units: $k_1a = 1/s$, $a = cm^2$, $k_1 = cm/s$, $U_1 = cm/s$ and $U_g = cm/s$</p>
Alvarez-Cuenca and Nerenberg (1981) [A4]	Physical absorption: air/water	glass beads (1, 3 and 5 mm)	Two-dimensional (660 mm x 25 mm)	Local value of k_1a was analyzed based on the plug flow model.

Table 1-4 (Continued)

Investigators	Gas/Liquid system	Solid	Column diameter	Correlations or remarks
Koide et al. (1984) [K21]	Physical absorption: Air/water, glycerol aq. soln., glycol aq. soln., barium chloride aq. soln. and sodium sulfate aq. soln.	glass beads (0.0475-0.192 mm, 4 kinds) Bronze beads (0.081 mm)	100, 140, 218 and 300 mm	$\frac{k_1 a \gamma_1}{\rho_1 D_{1g}} = \frac{2.11 \left(\frac{\mu_1}{\rho_1 D_1} \right)^{0.500} \left(\frac{g \mu_1^4}{\rho_1 \gamma_1^3} \right)^{-0.159} \frac{1}{\epsilon_g^{1.18}}}{1 + 1.47 \times 10^4 \left(\frac{\bar{c}_s}{\rho_s} \right)^{0.612} \left(\frac{v_t}{\sqrt{D_c g}} \right)^{0.486} \left(\frac{D_c^2 g \rho_1}{\gamma_1} \right)^{-0.477} \left(\frac{D_c U_g \rho_1}{\mu_1} \right)^{-0.345}}$
Nguyen-Tien et al. (1985) [N6]	Physical absorption: air/water	glass beads (0.05-8 mm, 7 kinds)	140 mm	<p>k_1a was analyzed based on the backflow cell model.</p> <p>for $0.05 \leq d_p \leq 1$ mm</p> $k_1a = 0.39 (1 - \bar{\phi}_s / 0.58) U_g^{0.67}$ <p>where $\bar{\phi}_s = \epsilon_s / (1 - \epsilon_g)$. Units: $k_1a = 1/s$, $U_g = m/s$</p>

Alvarez-Quencaら[A4]の k_1a に関するデータを軸方向混合拡散モデルに基づいて再検討し、液相中の物質移動種の濃度の軸方向分布は、流動層全体にわたって軸方向距離に依存しない1組の k_1a と E_{z1} によってうまく表されることを示した。

Nguyen-Tienら[N6]は、3相流動層及びスラリー輸送層において、混合拡散モデルと類似の流動モデル(バック・フローセルモデル)を用いて k_1a を測定した。その結果、液相中の物質移動種の濃度の軸方向分布は1組の k_1a と E_{z1} によって表されること、直径1mm以下の粒子を用いた場合には k_1a は粒子濃度とガス流速のみの関数によって表すことが出来ること、及び直径1mm以上の粒子を用いた場合には k_1a は d_p 、 U_g 或は U_1 の増大と共に増大することを報告した。

このように、3相流動層の気液間物質移動特性に関しては、比較的多くのデータが出そろっているため、実際に装置設計する場合においては、類似した系から得られた相関式を利用することが出来ると思われる。

(b) スラリー気泡塔における気液間物質移動と界面積

スラリー気泡塔の気液間物質移動特性に関する研究には、加藤ら[K2,K4]の亜硫酸ソーダ水溶液系スラリー気泡塔における k_1a の測定や、Koideら[K21]の非電解質の液体を用いたスラリー気泡塔における k_1a の測定などがある。これらによると、 k_1a は粒子濃度の増大と共に減少し、ガス流速の増大と共に増大することがわかる。しかし、これらの研究報告では、粒子濃度の範囲が臨界粒子濃度(1.2参照)以下に限られており、高粒子濃度領域での物質移動特性については明らかにされていない。さらには、 k_1a を k_1 と a とに分離して、それらを別々に検討した研究報告もほとんどない。

1.3.2 粒子液間物質移動

3相流動層の粒子液間物質移動係数 k_s に関する研究報告は極めて少なく断片的にしか調べられていない[A5,N8,P2]。これらの研究データだけでは、3相流動層の k_s に及ぼす粒子径、粒子密度や気、液の流速の影響を広範な条件下で総合的に評価することはできない。

スラリー気泡塔の k_s に関する研究は、川村ら[K12]、Sanoら[S2]、Sängerら[S3]などによって行われている。彼らはいずれも、Kolmogoroffの局所等方性乱流理論[H8]から導かれる液相単位質量当りのエネルギー散逸速度を用いて k_s の相関を行っている。これらの研究者によって提出された相関式は互いに近い k_s の推算値を与えており、しかも実測値との一致性も極めてよい。そこで、エネルギー散逸速度を用いた k_s の相関方法を3相流動層に応用してみることは、一つの有効な方法と考えられる。

1.3.3 壁面液間物質移動

3相流動層を電気化学的反応器として用いる場合、電極近傍の液を流動化粒子或は気泡の攪乱作用によって激しく乱すことによって、物質移動速度を増大させ、更に電極界面に生ずる過電圧或は電極表面への不純物の付着等の反応器にとって不利な条件を排除することが可能となる。したがって、壁面液間物質移動特性は、それ自身実際の操作で重要な意味を持つ。さらに、壁面液間物質移動特性は、壁面における伝熱とも密接に関連しているので、その解明は、伝熱・物質移動のアナロジーに基づいた壁近傍における伝熱機構の解明のための手段として極めて有効である。

壁面液間物質移動係数 k_w に関する研究は、液固流動層に関しては多数行われてきたが、3相流動層に対しては諸岡ら[M9]の矩形流動層を用いて行った報告があるのみである。

1.4 伝熱特性

(a) 3相流動層における伝熱特性

3相流動層の伝熱特性に関する研究は多数報告されている。それらの実験系は、層内挿入発熱体と層間の伝熱係数を測定する系と、塔壁面と層間の伝熱係数を測定する系の2つに大別される。これらの研究のうちの代表的なものをTable 1-5に示す。

Bakerら[B1]、Katoら[K8,K9]は層内挿入発熱体を用いて発熱体表面と層間の伝熱係数 h を、一方、Viswanathanら[V1]、Katoら[K6,K7]、Chiuら[C2]は塔壁面と層間の h を測定している。これら諸研究者の h はいずれも層本体中の伝熱抵抗をも含んだ総括伝熱係数であるために、装置の幾何学的条件、或は操作条件によって、層本体中の伝熱抵抗の影響を除去した壁境膜伝熱係数 h_w とは異なった挙動を示すと考えられる。

一般に、反応器の温度制御のためには温度推進力をある程度大きく取らなければならない。その場合、装置内には層本体中の伝熱抵抗のために半径方向に温度分布が生じることも考えられる。実際、Chiuら[C2]は3相流動層の本体中において半径方向の温度分布の存在を確認している。しかし、3相流動層の層本体中及び壁面近傍における伝熱現象を別々に検討し、層本体中の伝熱抵抗が全伝熱抵抗に対してどの程度の割合を占めるかといった報告はまだない。更に、3相流動層の伝熱現象は装置の幾何学的構造因子の影響を受けると考えられるが、これについて検討した研究報告は少なく不十分である。

(b) スラリー気泡塔における伝熱特性

スラリー気泡塔における伝熱特性はKölbelら[K24,K25]によってまず行われ、伝熱係数は粒子濃度や粒径の増大によって増大すると報告された。Deckwerら[D7]は、スラリーを液体として考え、スラリーそのものの粘度、密度及び熱伝導度を用いれば、伝熱係数は粒子のない気泡塔における h_w を相関した式[D6]によって良好に相関されると報告した。ここで、スラリー気

Table 1-5 Wall-to-bed heat transfer studies on three-phase fluidized beds

Investigators	Column diameter and heating method	Gas/Liquid	Solid	Correlations and remarks
Viswanathan et al. (1964) [V1]	$D_c = 50.8$ mm steam heated column wall	air/water	quartz particles (0.649 and 0.928 mm)	graphical description flat radial temperature distribution
Baker et al. (1978) [B1]	$D_c = 240$ mm electrically heated rod (coaxially immersed, $D_i = 63$ mm)	air/water	glass beads (0.5, 1, 3 and 5 mm)	$h = 1977 U_l^{0.070} U_g^{0.059} d_p^{0.106}$ Units: $h = W m^{-2} K^{-1}$, U_l and $U_g = mm/s$ and $d_p = mm$
Kato et al. (1981) [K7]	$D_c = 52$ and 120 mm electrically heated column wall	air/water air/CMC soln.	glass beads (0.42, 0.66, 1.2 and 2.2 mm)	$Nu' = 0.44 (Re' Pr)^{0.78} + 2.0 Fr_g^{0.17}$ where $Nu' = h d_p \epsilon_l / (\lambda_l (1 - \epsilon_l))$, $Re' = U_l d_p / (\nu_l (1 - \epsilon_l))$, and $Fr_g = U_g^2 / (g d_p)$ almost flat radial temperature distribution
Chiu and Ziegler (1983) [C2]	$D_c = 50.8$ mm electrically heated column wall	air/water	glass beads (1 and 3 mm) porous γ -alumina pellets (cylindrical shaped, 3.18×3.18 , 4.76×3.18 and 4.76×4.76 mm)	$Pr^{2/3} St_{m3} = c Re_{m2}^{-0.305}$ $c = 0.1238$ for γ -alumina pellets $c = 0.1038$ for 1 mm glass beads $c = 0.088$ for 3 mm glass beads where $St_{m3} = h \epsilon_l / (C_{pl} \rho_l U_l)$, $Re_{m2} = U_l \epsilon_l / (S(1 - \epsilon_l) \nu_l)$ at $U_g = 0$ and $S =$ surface area of particles per unit volume of solid Radial temperature variation was observed.

Table 1-5 (Continued)

Investigators	Column diameter and heating method	Gas/Liquid	Solid	Correlations and remarks
Kato et al. (1984) [K8]	$D_c = 120$ and 190 mm electrically heated rod (horizontally immersed, $D_i = 12.7$ and 38 mm)	air/water air/CMC soln.	glass beads (0.52, 1.2 and 2.2 mm) porous alumina beads (3.2 mm)	$Nu' = 0.12 [((D_{i0} + D_i)/D_i)^{0.5} (Re' Pr)^{0.65 + 0.12 Fr_h^{0.5}} + 1.3 Fr_p^{0.33}]$ where $Nu' = h d_p \epsilon_l / (\lambda_l (1 - \epsilon_l))$, $Re' = d_p U_l / (\nu_l (1 - \epsilon_l))$, $Fr_h = U_g^2 / (g D_{i0})$, $Fr_p = U_g^2 / (g d_p)$ and $D_{i0} = 2$ cm
Kato et al. (1984) [K9]	$D_c = 120$ and 190 mm electrically heated rod (coaxially immersed, $D_i = 22$ mm)	air/water air/CMC soln.	glass beads (0.52, 1.2 and 2.2 mm) porous alumina beads (3.2 mm)	$Nu' = (0.058 (Re' Pr)^{0.78} + 2.3) (D_i/D_{i0})^{-0.5}$ where $Nu' = h d_p \epsilon_l / (\lambda_l (1 - \epsilon_l))$, $Re' = d_p U_l / (\nu_l (1 - \epsilon_l))$ and $D_{i0} = 2.2$ cm

泡塔においては操作液流速は一般に小さく(Fig.1-3)、層内の気泡による攪乱作用は極めて大きい。従って、層本体中の伝熱抵抗は無視でき、半径方向の温度分布は一樣と考える。このように、スラリー気泡塔における伝熱現象は、3相流動層の場合と比較して、単純であり問題は少ないと思われる。

1. 5 本研究の目的と概要

1. 2 ~ 1. 4 節において、3相流動層及びスラリー気泡塔の流動、物質移動、及び伝熱などの基礎的装置特性に関するこれまでの研究成果を述べると共に、その問題点を指摘した。それを要約すれば、3相流動層及びスラリー気泡塔においては気液固3相が共存状態にあり、かつ相互に作用し合いながら運動しているために、極めて複雑な流れ系を形成している。そのため現在までの研究では、これらの操作における限定された操作条件に対しての流動モデルの提出と、それに基づいた装置特性の検討に限られている。従って、多様な流れ系を忠実に把握し、その多様性に十分に対処できる理論的基盤はまだ確立されていない。

そこで本研究では、3相流動層及びスラリー気泡塔の多様な流れ系を把握し合理的な装置の設計と運転を行うために、まず流動層内の流動、物質移動及び伝熱の基礎的装置特性の広範な実験データの蓄積を行うこと、次に、得られた実験データを現象に基づいて解析し、本流動層操作の多様性に十分に対処し得る理論基盤を確立することを目的とした。この目的のために大別して以下に述べる3点の課題に対して研究を行う。

(I) 今日まで別々に論じられてきた3相流動層とスラリー気泡塔に関する流動現象を、それらに共通する現象的、及び理論的基盤に基づいて検討する。すなわち、両操作に対して特有的に現れる粒子ホールドアップの挙動を、両操作に対して統一して表すモデルを提出する。これによって、両操作の境界領域で現れる高濃度スラリー気泡塔の流動現象も解析することが可能となる。

(II) 気-液間、粒子-液間、壁面-液間の物質移動特性を、気液2相流や気液上昇並流充填層などの類似した操作にも研究の対象を拡大して検討する。これによって、3相流動層及びスラリー気泡塔における物質移動現象は広い視野に立脚して解析することが可能となる。さらに、種々の操作における結果から得られた共通点に基づいて、それらの操作に共通して使用できる相関式を提出する。

(III) 3相流動層の伝熱現象の詳細な解明のために、層内温度分布の解析を行う。塔壁面-液間の伝熱現象を壁面近傍における伝熱現象と層本体中での伝熱現象とに分離し、それぞれを別々に解明する。層本体中の半径方向の伝熱現象を半径方向の液混合現象に基づいて解析する。一方、壁面伝熱現象と壁面物質移動現象との相似性について調べ、その結果に基づいて壁面伝熱係数の相関を行う。

以上の3点の課題を以後3編に分けて、個々の問題に対して第1編第2章以下第3編第8章までの各章で個別に取り扱う。

第1編第2章では、3相流動層及びスラリー気泡塔の気液固各相のホールドアップの挙動を調べた。まず、粒子ホールドアップの軸方向分布を調べ、それから得られた知見を基に、3相流動層とスラリー気泡塔の両操作に対して共通に適用できる流動モデルを提出した。次に、このモデルに基づいて気液固各相のホールドアップの相関式を提出した。併せて、スラリー気泡塔における軸方向の粒子混合拡散係数の相関式も提出した。さらに、これらの相関式を用いて、軸方向の粒子濃度分布の推定法を確立した。

第1編第3章では、スラリー気泡塔と3相流動層の両操作において、気泡群の挙動(ガスホールドアップ、気泡径及び気泡上昇速度)を検討した。特に、スラリー気泡塔と3相流動層の境界領域における気泡群の挙動の解明に重点を置き、第2章で提出した流動モデルを支持する結果を得た。また、本章で得られた気泡特性に関するデータは、第4章で取り扱う気液間物質移動現象の解明において基礎資料となる。

第2編第4章では、スラリー気泡塔における気液間物質移動特性を、特に、粒子濃度の高い操作域を中心にして検討した。すなわち、まず液相容量係数 k_1a を測定し、これを操作条件から推定する相関式を得た。次に、第3章で得た平均気泡径とガスホールドアップのデータを用いて気液界面積 a を算出し、 k_1a と a から液側物質移動係数 k_1 を分離した。最後に、 a 及び k_1 それぞれに対して操作因子の影響を調べ、それらの因子を用いて a 及び k_1 を相関した。

第2編第5章では、3相流動層における粒子液間物質移動特性について検討した。すなわち、まず3相流動層及びこれと類似の操作形態を持つ気液2相流や気液上昇並流充填層などにおける粒子液間物質移動係数を測定し、各種の多相接触装置における粒子液間物質移動現象を比較した。これから種々の多相接触装置に共通した物質移動機構について論じ、そこから統一した物質移動係数の相関式を提出した。

第2編第6章では、3相流動層の壁面液間物質移動特性について検討した。すなわち、第5章と同様にして、3相流動層と類似の操作形態を持つ各種の多相接触装置にまで対象を広げて壁面液間物質移動係数を測定し、これら種々の多相接触装置に共通する壁面移動現象について論じ、これからこれらの装置に共通して適用可能な相関式を提出した。

第3編第7章では、3相流動層の伝熱現象を解析し、まず総括伝熱係数を得、次に壁面及び層本体の双方に伝熱抵抗が存在するとした直列伝熱抵抗モデルに基づいて、見かけの壁面伝熱係数及び半径方向の有効熱伝導度を得た。これらの結果から、層本体内の伝熱抵抗の全伝熱抵抗に対する割合を評価した。次に、見かけの壁面伝熱係数と第6章で検討した壁面液間物質移動係数との間の相似則の成立を見だし、これに基づいて見かけの壁面伝熱係数の相関を行った。一方、半径方向の有効熱伝導度が層内の流動様式と密接に関連して変化することを示し、半径方向の伝熱機構の解明のためには、半径方向の液混合特性の検討が不可欠であることを指

摘した。

第3編第8章では、第7章の議論を踏まえて、3相流動層の半径方向の液混合特性を検討した。本章の内容は、本来、第1編で論じられるべきであろうが、本研究においては半径方向の伝熱特性との関連性を重視し、あえて第3編で論じた。従って、本章で得た知見を基に、第7章で検討した半径方向の伝熱機構の解明を行った。

最後に、第9章において、これまでの各章で得られた知見、成果を総括した。

第 1 編

気液固3相流動層における流動

第2章 3相流動層およびスラリー気泡塔における 各相のホールドアップ

緒 言

気液固3相系操作におけるホールドアップは、本操作を種々の物理的、化学的及び生物のプロセスに応用するときには必須の基礎データである。例えば、粒子ホールドアップは層内粒子量と対応しているので、直接的に装置の寸法を規定する尺度となる。気液のホールドアップはそれぞれの相の滞留時間の推定に重要である。さらに、気液固各相のホールドアップのデータは、後の章で述べるように物質移動特性や伝熱特性を実験的に求める場合や、これらを相関する場合に必要となる。したがって、ホールドアップデータを与えられた操作条件から推定できるようにすることは、本流動層の装置設計や運転のために極めて重要となる。

しかし、スラリー気泡塔と3相流動層のホールドアップに関する研究は、第1章で指摘したように、それぞれの操作形態に対して別々に行われてきたために、両者を含めた全操作領域にわたってホールドアップの挙動を調べ、それを操作条件から把握できるようにした研究報告は行われていない。

そこで、本章ではまず、塔内における気液固各相ホールドアップの軸方向分布を測定し、これが粒子径、気液の流速などの操作条件によって、どのように影響されるかを調べた。このうち、特に気液固の操作条件に対して特徴的に変化する粒子ホールドアップの軸方向分布の挙動を解析し、3相流動層操作とスラリー気泡塔操作の区別を取り払い、両者を包括して取り扱える流動モデルを提出した。そして、本モデルに基づいた気液固各相のホールドアップの推定法を確立した。

2.1 実験装置および方法

2.1.1 実験装置

実験装置の概略をFig. 2-1に示す。塔本体には、内径の異なる3種類の透明アクリル樹脂製円筒を使用した。それらの寸法は、内径0.074 m、高さ2.3 m(以後FB1と呼ぶ)、内径0.1 m、高さ3.05 m(以後FB2と呼ぶ)、及び内径0.15 m、高さ1.55または3.05 m(以後FB3と呼ぶ)である。ホールドアップデータの測定は、主にFB1及びFB3を用いて行った。FB2は主にホールドアップ測定のための種々の方法を比較検討するために使用した。

塔本体下部に、塔本体と同じ内径の整流部を設け、整流部と流動層部の境界には、流動化粒子よりも小さい目開きのステンレス鋼製金網を挿入した。整流部下部にガス分散器を設けた。

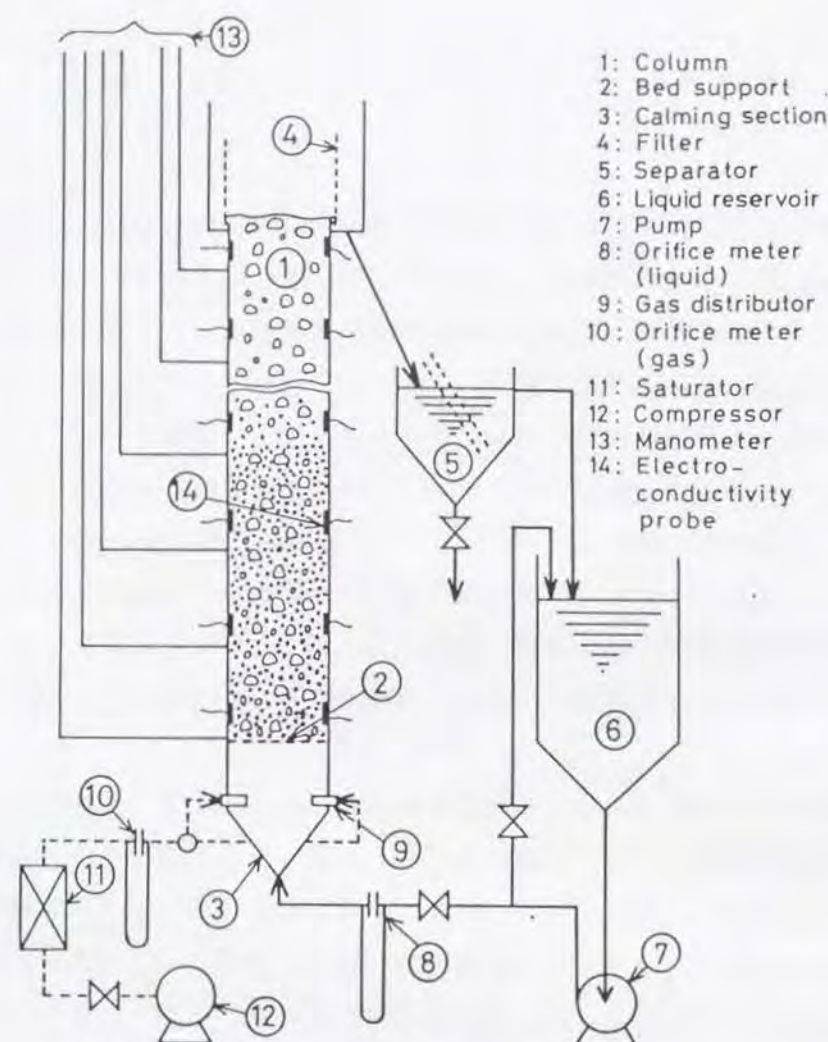


Fig.2-1 Schematic diagram of experimental apparatus.

ガス分散器には、通常、内径2.6mmステンレス鋼管6本(FB1)あるいは8本(FB2,FB3)を塔の周方向に均等に配したものを、高ガス流速域では一部、整流部中心軸上に設置した単孔ノズルも併用した。

塔本体の壁面に、静圧タップを設け、これを静圧測定用マノメータと接続した。各静圧タップの塔内開口部には、粒子のタップへの流入防止のためステンレス金網を張り付けた。さらに、FB2及びFB3の塔本体の内壁面に、塔内断面平均の電気伝導度を測定するための電極を、軸方向に10~30cm間隔に設けた。

気体には空気を、液体には水道水をそれぞれ使用した。固体には篩分けたガラス球及び無孔性アルミナ球を使用した。粒子の特性及び実験条件をTable 2-1に示す。ここで、FB3を用いて直径0.46mm以下の微粒子を流動化させる操作においては、粒子の塔外への流出を防止するために、200メッシュステンレス鋼製金網で製作した直径0.2m、高さ0.25mの円筒型フィルターを塔頂部に設置した。

2. 1. 2 気液固各相のホールドアップの測定法

塔本体任意高さにおける断面平均の気液固の各相ホールドアップ ϵ_g 、 ϵ_l 及び ϵ_s と、塔内静圧勾配 dP/dz の間には、次式の関係が成立する。

$$-dP/dz = (\epsilon_g \rho_g + \epsilon_l \rho_l + \epsilon_s \rho_s) g \quad (2-1)$$

ここで、 ρ_g 、 ρ_l 、 ρ_s はそれぞれ気、液、固各相の密度であるが、一般に、 $\rho_g \ll \rho_l$ 、 ρ_s であるから、Eq.(2-1)右辺の $\epsilon_g \rho_g$ の項は省略できる。

他方、各相ホールドアップには、その定義から次の関係が成立する。

$$\epsilon_g + \epsilon_l + \epsilon_s = 1 \quad (2-2)$$

比較的直径の大きい、あるいは密度の大きい粒子(すなわち、液の浮力に対して粒子の重量が十分に大きい粒子)を流動化させた場合には、流動層領域と流動層上部の粒子を含まない領域が明瞭に現れる。このような場合、流動層高 H は塔内の静圧分布あるいは直接の目視によって決定でき、層平均の ϵ_s は次式を用いて求められる。

$$\epsilon_s = W / (\rho_s A H) \quad (2-3)$$

ここで、 W は塔内投入粒子質量、また A は塔断面積である。

層全体での圧力損失 ΔP はEq.(2-1)を用いて、

$$\Delta P / H = (\epsilon_l \rho_l + \epsilon_s \rho_s) g \quad (2-4)$$

となる。従って、Eq.(2-3)で得られた ϵ_s をEq.(2-4)に代入することにより ϵ_l が得られる。最後に、Eq.(2-2)に ϵ_l 及び ϵ_s を代入して ϵ_g が得られる。

上に述べた方法は、スラリー気泡塔のように ϵ_s が軸方向に大きく変化する場合には適用できない。そこでこのような場合には、電気伝導度法[B3,K7]を併用した。塔内の粒子がガラス球の

Table 2-1 Properties of solid particles and experimental conditions

D_c [mm]	T [K]	Fluidized material	d_p [mm]	Mesh size	V_t [cm/s]	U_l [cm/s]	U_g [cm/s]	U_i [cm/s]	n [-]
150	293.2 +0.2	Glass beads	0.16	80-100	1.63	0.1-0.7	0.4-11.0	1.63	4.04
			0.23	60-65	2.8	0.15-1.2	0.4-11.0	2.8	3.70
			0.46	32-35	6.7	0.5-4.0	0.8-13.5	6.7	3.16
	283.2 +2.0		1.1	14-16	14.8	1.0-11.0	0.4-18.0	13.0	3.05
			3.1	6-7	35.2	3.0-15.0	0.5-20.0	26.5	2.55
			4.8	3.5-5	46.5	10.0-15.0	0.4-20.0	35.0	2.42
74	293.2 +2.0	Glass beads	1.1	14-16	16.8	2.0-11.1	0.4-8.0	13.5	2.76
			2.2	8-9	28.6	3.9-12.0	0.4-15.0	21.5	2.39
			3.1	6-7	36.5	5.0-18.0	0.4-15.0	27.4	2.39
			4.8	3.5-5	47.5	6.0-26.0	0.4-21.0	36.0	2.39
		Non-porous alumina beads	2.0	8-10	36.5	4.5-20.0	0.5-21.0	27.0	2.47

Density of glass beads = 2500 kg/m³, density of non-porous alumina beads = 3550 kg/m³

ような非電導性物質である場合、塔内任意断面における電気伝導度を K とすると、その位置における ϵ_l と K との間には近似的に、

$$K/K_0 = \epsilon_l^m \quad (2.5)$$

の関係が成立する。ただし、 K_0 は塔内を液のみで満たしたときの電気伝導度である。指数 m の値を、 ϵ_l が容易に得られる液固流動層操作あるいは気泡塔操作によって求めたところ、FB2 では 1.33 であり FB3 では 1.20 であった。

次に ϵ_g 、 ϵ_l 、 ϵ_s を電気伝導度電極を設置した軸方向位置 z の関数として、Eqs. (2-1), (2-2) 及び (2-5) を連立させて解くことによって求めた。これを全ての電極位置において行い、各相ホールドアップの軸方向分布を求めた。

2. 2 実験結果および考察

2. 2. 1 気液固各相のホールドアップの軸方向分布

まず基礎資料となる液固流動層のホールドアップの挙動を調べた。Fig. 2-2 に 0.23 mm ガラス球を流動化させた液固流動層における粒子ホールドアップ ϵ_s の軸方向分布を、種々の液空塔速度 U_l に対して示す。液固流動層操作においては、ここに例示したような微小粒子を用いた場合においても、塔下部の流動層領域と、その上部の液のみの領域とが明瞭に分離されて現れる。しかも、流動層領域における ϵ_s は、軸方向距離 z に対して層本体底部及び層本体上部の境界近傍を除きほぼ一様値を示した。

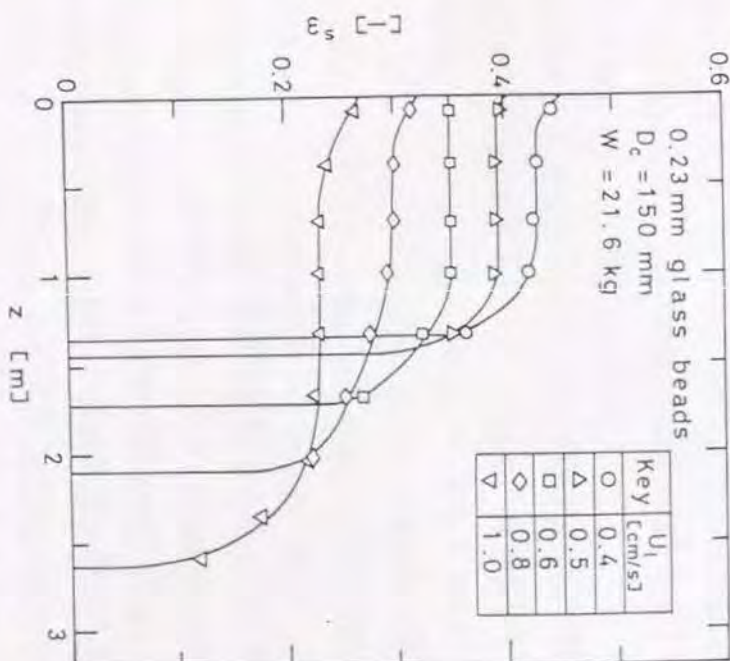


Fig. 2-2 Axial distribution of solid holdup in a liquid-solid fluidized bed.

次に、粒子径 d_p を変化した液固流動層操作から得られた U_l 対液ホールドアップ ϵ_l の関係を Fig. 2-3 に示す。この図に示すように、液固流動層操作全てにおいて、 U_l 対 ϵ_l の関係は次の Richardson-Zaki [R4] あるいは Garside ら [G1] の式によって良好に表された。

$$U_l/U_i = \epsilon_l^n \quad (2-6)$$

ここで、 U_i は U_l 対 ϵ_l の点綴を $\epsilon_l \rightarrow 1$ に外挿したときの U_l であり、 n は Richardson-Zaki [R4] によって、 d_p 、塔径 D_c 及び $Re_t (= d_p V_t / \nu_l)$ の関数として次の Eq. (2-7) のように与えられている。

$$0.2 < Re_t \leq 1;$$

$$n = (4.35 + 17.5 d_p / D_c) Re_t^{-0.03}$$

$$1 < Re_t \leq 200;$$

$$n = (4.45 + 18 d_p / D_c) Re_t^{-0.1}$$

$$200 < Re_t \leq 500;$$

$$n = 4.45 Re_t^{-0.1}$$

$$500 < Re_t;$$

$$n = 2.39$$

(2-7)

実測した U_l 対 ϵ_l の関係から得られた U_i 及び n を Table 2-1 に示した。その結果、 U_i は $d_p \leq 0.46 \text{ mm}$ の微小粒子に対しては単一粒子の終末沈降速度 V_t と等しいが、 $d_p \geq 1.1 \text{ mm}$ においては U_i は V_t と比較して 10~20% 小さくなった。一方、 n の値は Eq. (2-7) からの値とほぼ一致した。これら U_i 及び n の実測値は、後に 3 相流動層およびスラリー気泡塔の流動モデルにおいて重要なパラメータとなる。

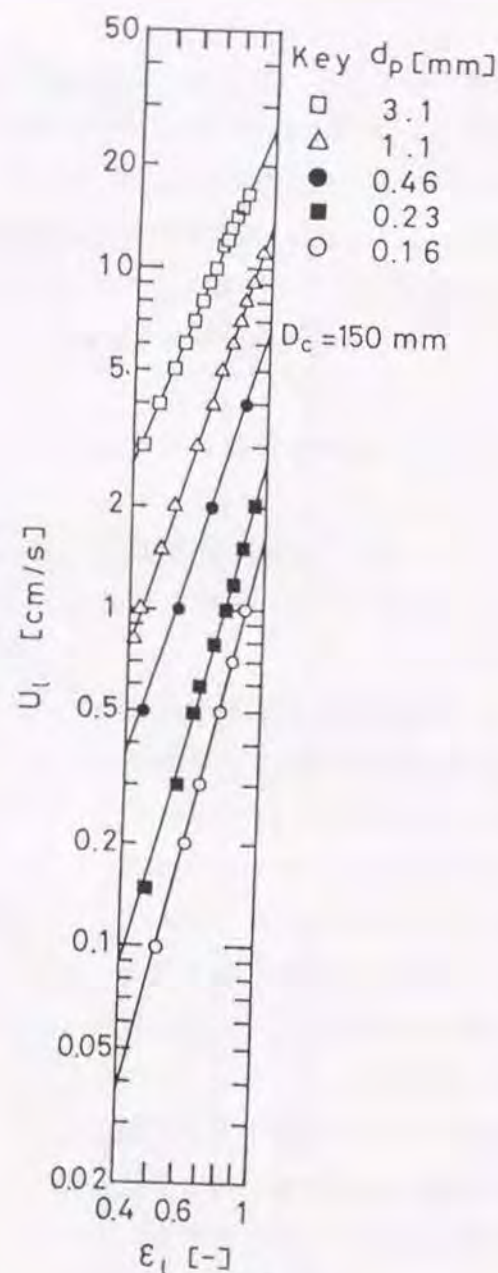


Fig. 2-3 Variation of ϵ_l with U_l in a liquid-solid fluidized bed (Richardson-Zaki plot).

Fig. 2-4 (a)~(c) に、3 相流動層およびスラリー気泡塔における気液固各相ホールドアップの軸方向分布を種々の d_p に対して示す。

まず粗大粒子 ($d_p = 3.1 \text{ mm}$) を流動化させた 3 相流動層操作においては (Fig. 2-4(a))、塔下部に、 z に対してほぼ一様な ϵ_s の分布を持つ流動層領域と、その上部に、粒子をまったく含まない気液 2 相流領域とが形成された。塔壁からの観察によっても粒子層界面が明瞭に確認できた。

次に $d_p = 0.46 \text{ mm}$ の場合 (Fig. 2-4(b))、塔下部の、 z に対してほぼ一様な ϵ_s をもつ流動層本体領域、その上部の、 ϵ_s が z の増大と共に急激に減少する遷移域 (固液分離部: Disengagement zone、第 1 章参照)、及び粒子を含まない気液 2 相流領域の 3 つの領域が塔本体中に形成される。粒子層の境界面は不明瞭となるが、静圧の軸方向分布を測定して流動層本体領域及び気液 2 相流領域におけるそれぞれの静圧プロットを外挿し、それらの交点から粒子層高 H は求められる。この H の値は遷移域内のほぼ中間に位置した。また、この H は粒子層全体において ϵ_s が流動層本体領域の ϵ_s の値に保たれると仮定して、Eq. (2-3) を用いて求められる H とほぼ一致した。

さらに d_p を小さくすると (Fig. 2-4(c))、粒子層は塔頂まで達し、 ϵ_s の軸方向分布は z の増大と共に徐々に減少する。

以上例示したような ϵ_s の軸方向分布の挙動を、Kato ら [K10] は濃厚粒子層領域と希薄粒子層領域とに分離して説明した。しかし、Kato ら [K10] による ϵ_s の軸方向分布の推定値は、図中に示すように、本実験結果を必ずしもよく説明しているとは言えない。

Fig. 2-4 の結果から、塔内の粒子濃度分布は d_p の減少と共に 3 相流動層型からスラリー気泡塔型へと移行することがわかった。そこで、3 相流動層とスラリー気泡塔の境界領域における ϵ_s の軸方向分布の挙動を詳細に調べたものを Figs. 2-5(a)~(d) に示す。液固系操作 ($U_g = 0$) においては、 d_p 、 U_l 及び W の値の組合せによって定まる軸方向に均一な ϵ_s の分布を持つ液固流動層が形成される。これに気体を吹き込んだときの ϵ_s の軸方向分布は、 d_p と W とによって大きく影響される。 d_p 、 W 共に小さい場合には、 ϵ_s は塔頂に向かって徐々に減少し、その分布は沈降拡散モデルによって良好に表された (Figs. 2-5(b))。一方、 d_p または W が大きい場合には、 U_g が小さいとき塔底部の濃厚粒子層とその上部に ϵ_s が塔頂に向かって急激に減少する遷移域とが形成され、 ϵ_s の軸方向分布は 3 相流動層のそれに近い形態となる (Figs. 2-5(a), (c), (d))。さらに U_g の増大によって ϵ_s は塔底で減少し同時に塔頂で増大し、その分布形態は塔底から塔頂に向かって連続的に減少するようになるが、 d_p が大きいときには、塔底部の濃厚粒子層が消失せず、 ϵ_s の軸方向分布は沈降拡散モデルで表すことが出来ない (Fig. 2-5(c), (d))。以上の結果から、3 相流動層とスラリー気泡塔の境界の操作領域における粒子濃度の軸方向分布は、 d_p 、 U_l 、 U_g 及び W の条件設定によっては沈降拡散モデルでは十分に解析できないことがわかった。そこで、これについては、2. 3 節で新たに流動モデルを提出して検討する。

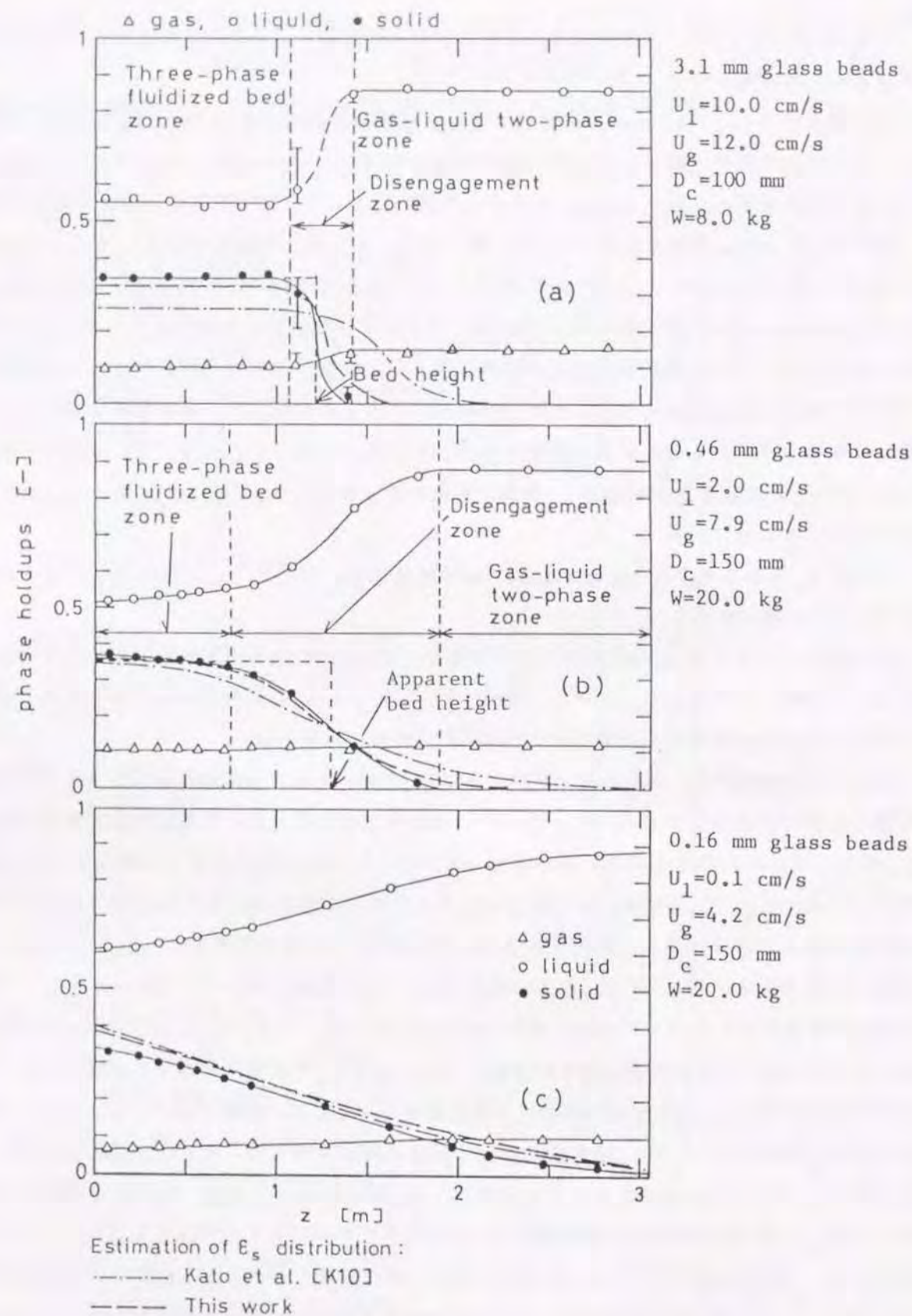


Fig.2-4 Axial distributions of individual phase holdups in a three-phase fluidized bed and a slurry bubble column.

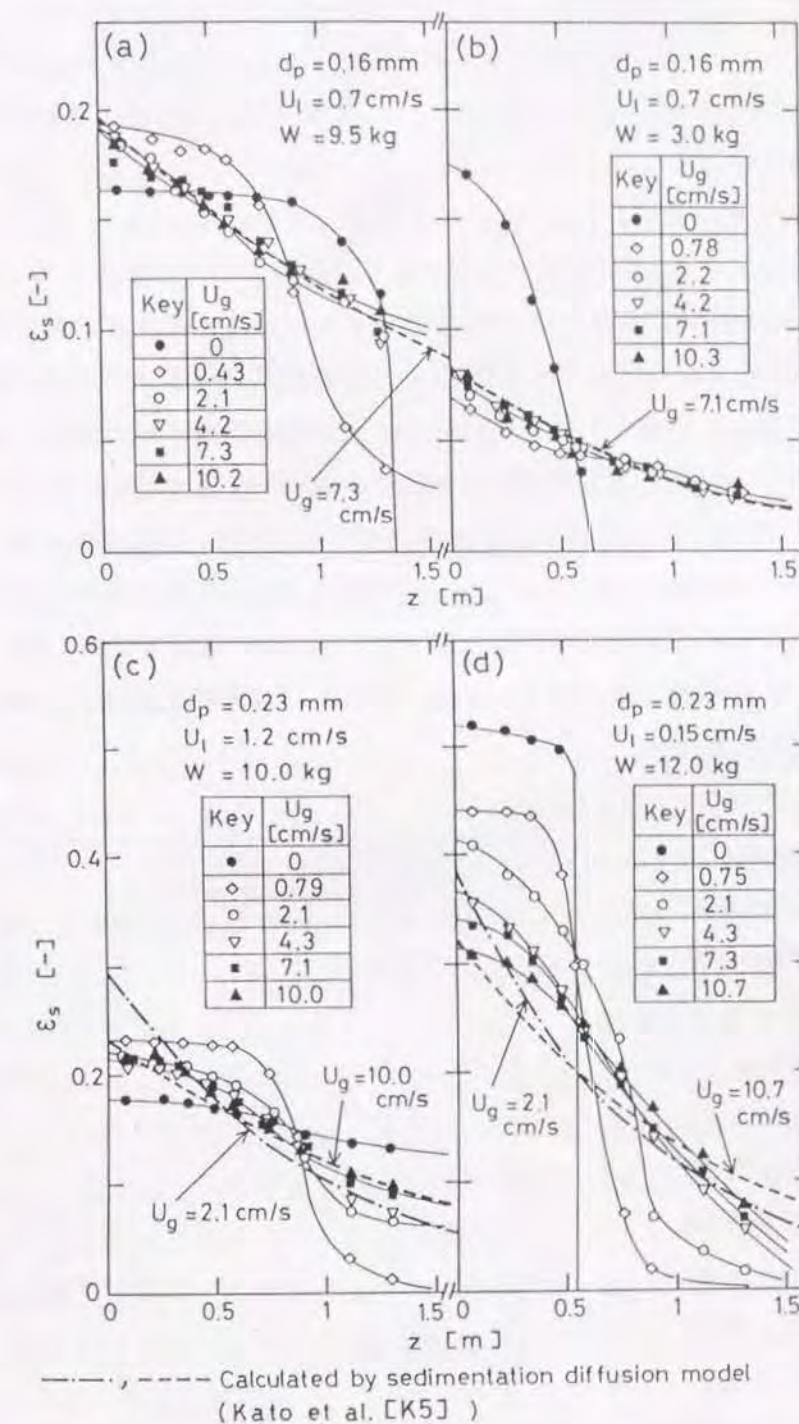


Fig.2-5 Effects of various operating parameters on the axial distribution of solid holdup in a slurry bubble column.

2. 2. 2 ガスホールドアップ ϵ_g の挙動

スラリー気泡塔における ϵ_g はデータのバラツキが相対的に大きく、 ϵ_g に対する操作変数の影響が十分には検討できなかった。これは、 ϵ_g の値は ϵ_l 、 ϵ_s の値と比較して約1桁小さいことが原因となっており、 ϵ_g の誤差が相対的に大きくなったためである。この ϵ_l 、 ϵ_s の測定誤差の主要な原因として、スラリー気泡塔では、ある時間スケール(約数10秒間隔)の不規則な周期を持った塔径規模の粒子層の循環流動のために、 ϵ_s の軸方向分布に揺らぎが生じ、これが測定値に誤差を生じさせたと考えられる。

従って、スラリー気泡塔における ϵ_g のより詳細な検討のためには、気相を直接捉えることが出来、かつ精度のよい ϵ_g の測定法が必要である。これについては第3章で検討する。

一方、 $d_p \geq 1.1\text{mm}$ の粒子を用いた3相流動層においては、塔下部に軸方向に様な濃度の粒子層(流動層)が形成される(Fig. 2-4(a)参照)。この流動層領域における粒子濃度の時間変動はスラリー気泡塔の場合と比較して非常に小さく、かつ粒子濃度の軸方向分布は同様である。また同時に、 ϵ_g 及び ϵ_l の軸方向分布も流動層領域において同様である。従って、狭義の3相流動層における ϵ_g の測定には、電導度法(Eqs. (2-2), (2-3), (2-5))、静圧法(Eqs. (2-2)~(2-4))あるいはそれらを組み合わせた方法(Eqs. (2-1), (2-2), (2-5))のどれも有効と考えられる。そこで、これら3種類の測定法による3相流動層の ϵ_g をFig. 2-6に示し相互に比較した。結果はどの測定法を用いても同じ ϵ_g を得ていることがわかる。従って、3相流動層の ϵ_g の測定には、上記のいずれの方法を用いても信頼性の高い ϵ_g を得ることが出来ると考えられる。

Fig. 2-7に $D_c=74\text{mm}$ 、 $d_p=3.1\text{mm}$ の3相流動層において静圧法によって求めた ϵ_g を、またFig. 2-8(a),(b)に $D_c=150\text{mm}$ 、 $d_p=1.1$ 及び 3.1mm の3相流動層において、電導度法によって求めた ϵ_g をそれぞれ示す。さらに、塔内に粒子を含まない気液2相流において求めた ϵ_g を比較のために示す。これらの図から、3相流動層の ϵ_g は U_g の増大と共に

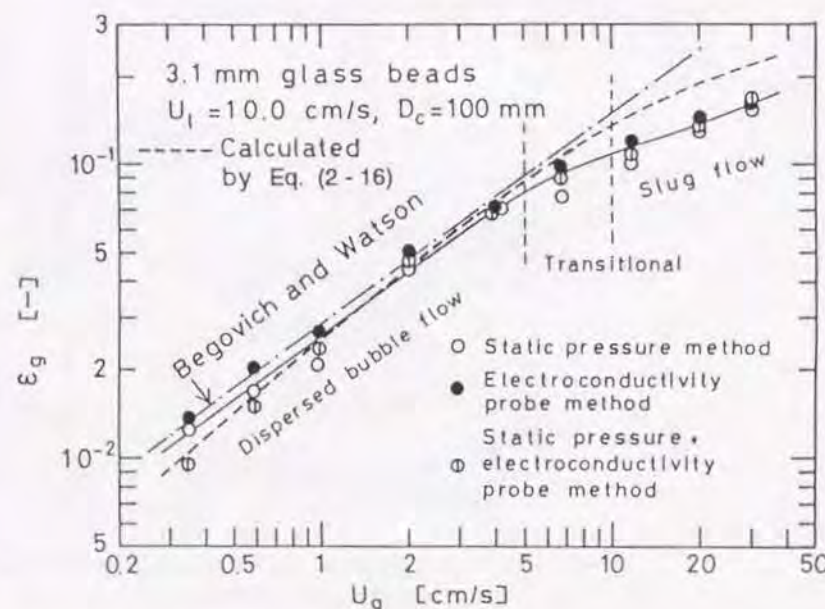


Fig. 2-6 Comparison of various methods for measuring gas holdup in the three-phase fluidized bed.

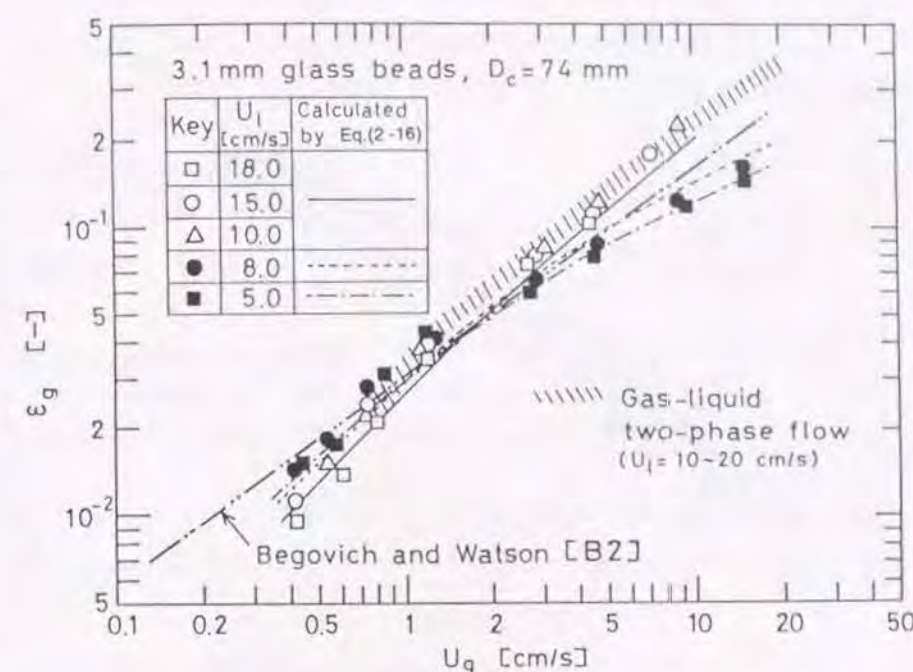


Fig. 2-7 Gas holdup in a three-phase fluidized bed containing 3.1 mm glass beads ($D_c=74\text{ mm}$).

増大し D_c の増大によって減少すること、及び ϵ_g が U_g に対して増大する割合は気泡流動様式によって異なることがわかる。

分散気泡流域では、 ϵ_g は U_g にほぼ比例して増大し、 U_l にはほとんど影響されない。またこの流動域の ϵ_g は、同じ U_l 、 U_g における気液2相流の ϵ_g とほぼ一致している。一方、合一気泡流及びスラグ流域における ϵ_g は、分散気泡流域の ϵ_g と比較すると、 $U_g < 1\text{cm/s}$ で若干大きい、 $U_g > 2\text{cm/s}$ では逆に小さい。また U_l の減少と共に ϵ_g は減少する。

以上の3相流動層の ϵ_g を、Akitaら[A2]の液回分式気泡塔における ϵ_g と比較した。一般に3相流動層の ϵ_g は気泡塔の ϵ_g と比較して小さい。これは3相流動層の分散気泡流では、大きい U_l で操作されているから、気泡が高速度で上昇する液流に同伴され、塔に対する気泡の上昇速度が気泡塔の場合よりも大きくなり、従って ϵ_g が小さくなったと考えられる。一方、3相流動層の合一気泡流及びスラグ流では、気泡塔と比較して、気泡の合一が活発であり、しかも層空隙が小さいことから、通気に有効な断面積が小さく、気泡の上昇速度は一層大きくなり、 ϵ_g が大きく減少したと考えられる。

次に、3相流動層の ϵ_g に関する代表的な既往の相関式と比較検討した。Begovichら[B2]の相関式(Table 1-2参照)による ϵ_g は、本実験値と近い値を示すが、流動様式の変化に伴う ϵ_g の変化を表していない。

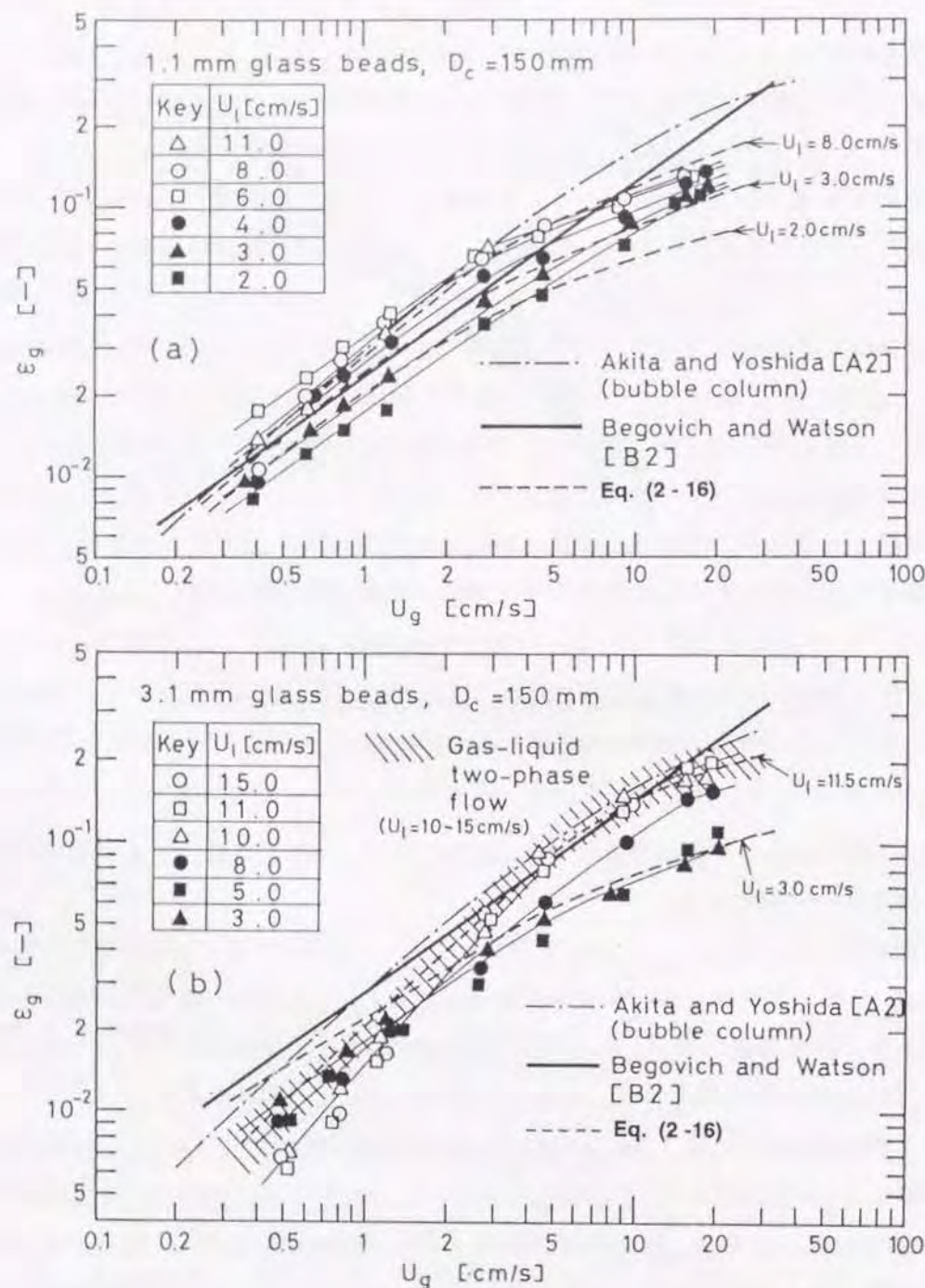


Fig.2-8 Gas holdup in a three-phase fluidized bed of $D_c=150$ mm.
(a): 1.1 mm glass beads, (b): 3.1 mm glass beads

2. 2. 3 3相流動層の ϵ_g の相関

ガスホールドアップの相関に、ドリフト-フラックスモデルを適用した。本モデルは、Wallis[W2]によって気液2相流に対して展開されたものであり、ドリフト-フラックス V_D は、

気液混相流の容積基準のフラックスに対する気体の相対速度（ドリフト速度）を空塔基準で表したものと定義される。Dartonら[D4]はこれを3相流動層に応用した。このドリフトフラックスをモデル化して示したものをFig.2-9に示す。この図より、気液2相流に対しては、

$$V_D / \epsilon_g = U_g / \epsilon_g - (U_g + U_l) \quad (2-8)$$

また3相流動層に対しては

$$V_D / \epsilon_g = U_g / \epsilon_g - (U_g + U_l / \phi_l) = U_g / \epsilon_g - [U_g + U_l (1 - \epsilon_g) / \epsilon_l] \quad (2-9)$$

$$\therefore V_D = U_g (1 - \epsilon_g) - U_l \epsilon_g (1 - \epsilon_g) / \epsilon_l = \epsilon_g (1 - \epsilon_g) U_s \quad (2-10)$$

ここで、 $\phi_l = \epsilon_l / (1 - \epsilon_g)$ 、 U_s は気液間の見かけのスリップ速度($=U_g / \epsilon_g - U_l / \epsilon_l$)である。

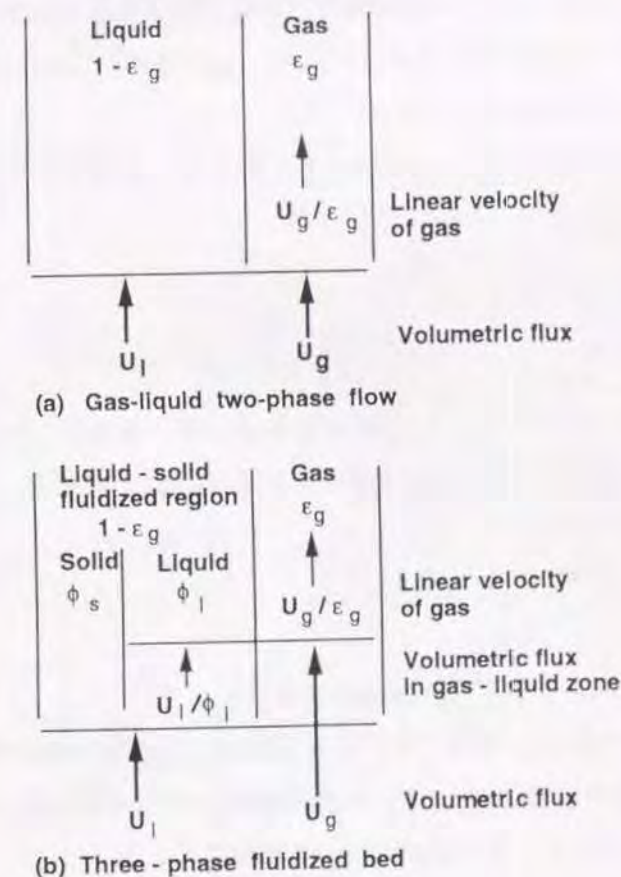


Fig. 2-9 Flow diagrams based on drift-flux model for (a) gas-liquid two-phase flow, (b) three-phase fluidized bed

Dartonら[D4]の方法に従って、気液2相流も含めた本実験データから得た V_D 対 ϵ_g の関係をFig.10(a),(b)に示す。3相流動層の V_D 対 ϵ_g の関係は、流動様式に対応して大きく異なった。まず、均一気泡流(分散気泡流)域では、 V_D は ϵ_g に比例して増大し次式で表された。

$$V_D = 18 \epsilon_g \quad (2-11)$$

ただし、 V_D [cm/s]である。次に、不均一気泡流(合一気泡流及びスラグ流)域においては、 V_D は ϵ_g の増大と共に著しく増大する。また流動様式が均一気泡流から不均一気泡流へ遷移するのに伴い V_D は ϵ_g のわずかな増大に対して飛躍的に増大する。

ところで、Dartonら[D4]によれば、均一気泡流域における V_D は

$$V_D = \epsilon_g U_{b0} \quad (2-12)$$

と書き表される。Eq.(2-12)は、全ての気泡は均一な群として気液混相媒体に対する一定なドリフト速度 U_{b0} で上昇することを意味しており、この U_{b0} の値は、Dartonら[D4]によって18cm/sの値が与えられている。本実験結果もこれに一致している。

次にEq.(2-12)と類似の関係が、不均一気泡流域に対しても適用できると仮定して、Eq.(2-12)を次式のように書き換える。

$$V_D = \epsilon_g \bar{U}_b \quad (2-13)$$

すなわち、不均一気泡流においては、気泡群は平均ドリフト速度 \bar{U}_b で上昇すると仮定する。Eq.(2-13)を本実験結果に適用し、 \bar{U}_b を操作条件に対して相関した結果、

$$\bar{U}_b = U_{b0} (1 + 0.32 D_c^{0.67} (U_g/U_l)^{0.8}) \quad (2-14)$$

を得た。ここで、 D_c [cm]であり、 $U_{b0}=18$ cm/sである。

ところで、均一気泡流は高 U_l 、低 U_g 域で現れるから、このような操作条件のもとでのEq.(2-14)の右辺は、ほぼ U_{b0} とおける。従って、気液2相流及び3相流動層の全流動域にわたってEq.(2-14)を適用することができ、その結果、 ϵ_g の相関式として

$$V_D = \epsilon_g U_{b0} (1 + 0.32 D_c^{0.67} (U_g/U_l)^{0.8}) \quad (2-15)$$

を得る。これを変形すると次式となる。

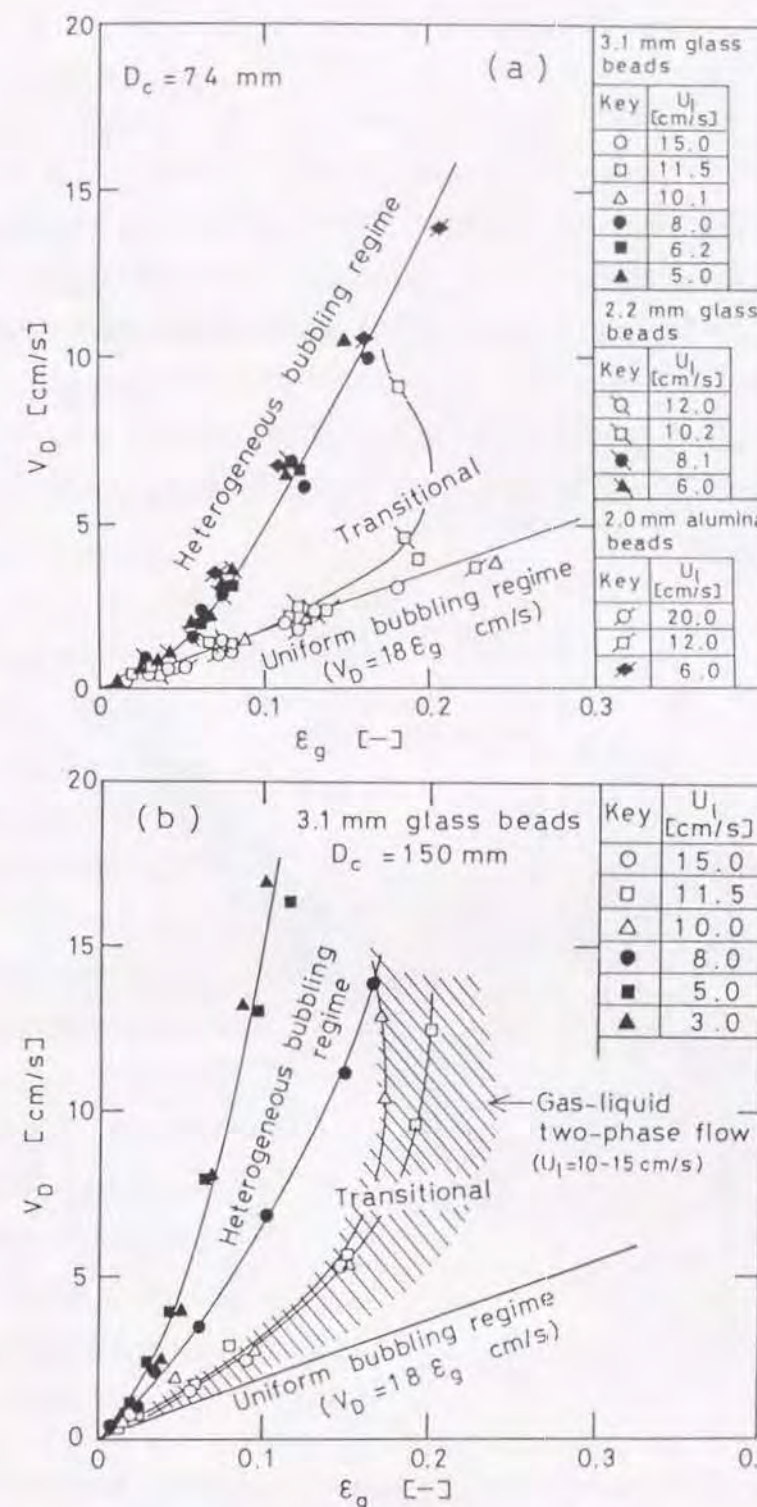


Fig.2-10 Drift-flux approach for gas phase in three-phase fluidized beds. (a): $D_c=74$ mm, (b): $D_c=150$ mm

$$(1-\epsilon_g)(U_g/\epsilon_g - U_l/\epsilon_l) = U_{b0}[1+0.32D_c^{0.67}(U_g/U_l)^{0.8}] \quad (2-16)$$

このEq.(2-16)には未知パラメータとして ϵ_g の他に ϵ_l も含んでいるが、 ϵ_l については次項で述べるように推定が可能である。従って、Eq.(2-16)中の ϵ_l の値に、実験値あるいは後に提出する相関式からの推定値を用い、試行錯誤法で解けば ϵ_g を算出することができる。

3相流動層及び気液2相流における ϵ_g の実験値と、 ϵ_l に実験値を用いてEq.(2-16)から得た ϵ_g の計算値との比較をFig.2-11に示す。Eq.(2-16)は本実験値を良好に相関していることがわかる。また、Michelsenら[M5]のデータも、図に示したようにEq.(2-14)によって良好に相関できた。さらに、Figs.2-6~2-8にEq.(2-16)を用いて計算した値をプロットしたところ、本相関式による ϵ_g の計算値は、流動状態の変化に伴う ϵ_g の変化の様子もよく説明している。

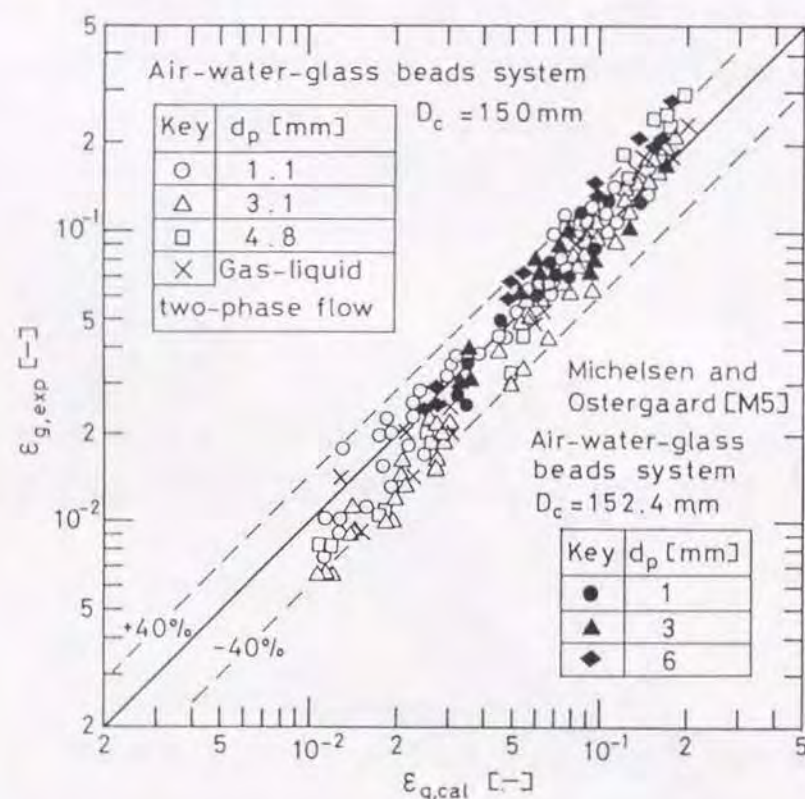


Fig.2-11 Comparison of ϵ_g values estimated by Eq.(2-16) with those observed in a three-phase fluidized bed.

2. 2. 4 3相流動層における液ホールドアップ ϵ_l

Fig.2-12に、 $D_c=150\text{mm}$ の塔を用い、1.1及び3.1mmガラス球を用いた場合の3相流動層の ϵ_l を示す。 U_g を増大させた場合、 ϵ_l は分散気泡流域においてはほとんど変化しないが、合一気泡流及びスラグ流域では減少する。

次に、本実験で得た3相流動層の ϵ_l の値を、既往の相関式のうちの代表的なもの(Tables 1-1, 1-2参照)を用いて推定した値と比較した。Fig.2-12に、これらの相関式を用いた対応する条件における推定値を示した。Bhatiaら[B4]及びDartonら[D4]のウェイクモデルによる相関式は、本実験値を全操作範囲にわたってほぼ満足に表している。Begovichら[B2]及びKatoら[K7]の実験式も、本実験値を一部の操作条件のものを除き、ほぼ満足に表している。これら既往の相関式を用いて推定した ϵ_l の値の本実験値に対する相対標準偏差(変動係数)は以下の通りである。

	$D_c=150\text{mm}$	$D_c=74\text{mm}$
Bhatiaら[B4]	0.069	0.12
Dartonら[D4]	0.083	0.11
Begovichら[B2]	0.14	0.17
Katoら[K7]	0.067	0.13

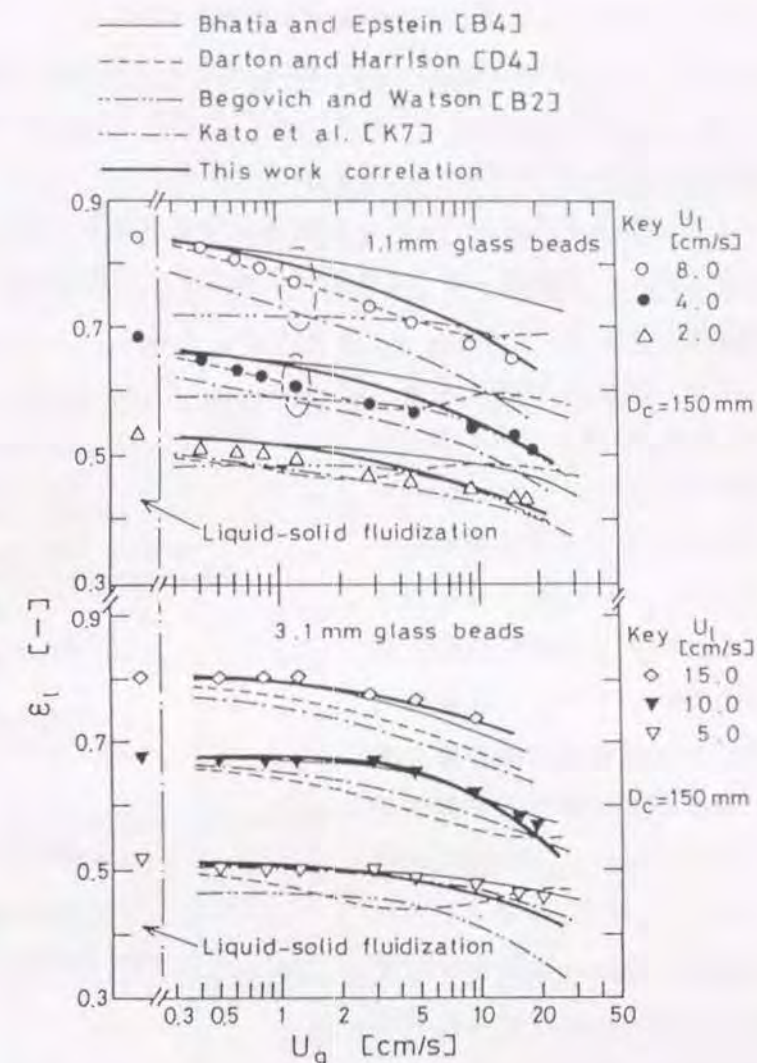


Fig.2-12 Variation of liquid holdup with gas flow rate in a three-phase fluidized bed.

2. 2. 5 3相流動層における粒子ホールドアップ ϵ_s

Fig.2-13に3相流動層の ϵ_s を示す。測定条件はFig.2-12の ϵ_l の場合と同一である。3相流動層の ϵ_s は ϵ_l と比較してやや複雑な挙動を示す。

まず $d_p=1.1\text{mm}$ の場合、 ϵ_s は低 U_g 域の合一気泡流において U_g の増大と共に徐々に増大するが、 $U_g>10\text{cm/s}$ のラグ流域では U_g の増大と共に逆に減少する。 U_g の増大によって ϵ_s が増大する(即ち層が収縮する)現象は、これまでウェイクモデルによって説明されてきた。その骨子は、第1章で述べたように気泡はその後部に粒子濃度の極めて小さいウェイク(後流)を伴って上昇し、そのため粒子を流動化させるのに必要な実質の液流速が減少し、粒子層の収縮が起こるとするものである。

次に、 $d_p=3.1\text{mm}$ の場合、 ϵ_s は U_g の増大と共に徐々に減少する。すなわち、低 U_l 域で現れる合一気泡流域においても、 $d_p=1.1\text{mm}$ の場合のような通気による層の収縮は起こらない。しかし、流動様式が分散気泡流から遷移域を経てラグ流へ移行する条件下($U_l=10\text{cm/s}$ 、 $U_g=8\sim 15\text{cm/s}$)では、 ϵ_s は U_g の増大と共に極小値をとった後増大に転ずる。これは以下のように説明できる。

まず、分散気泡流域では気泡の攪乱作用が極めて小さいために、通気した容積分だけ液の流路が狭められ、粒子を流動化させるための液速度が実質的に増大し、その結果として層が膨張し ϵ_s が増加する。しかし、 U_g が増大し流動状態がラグ流に変化すると層内に循環流動が生じ、この状態変化にともなう層は収縮に

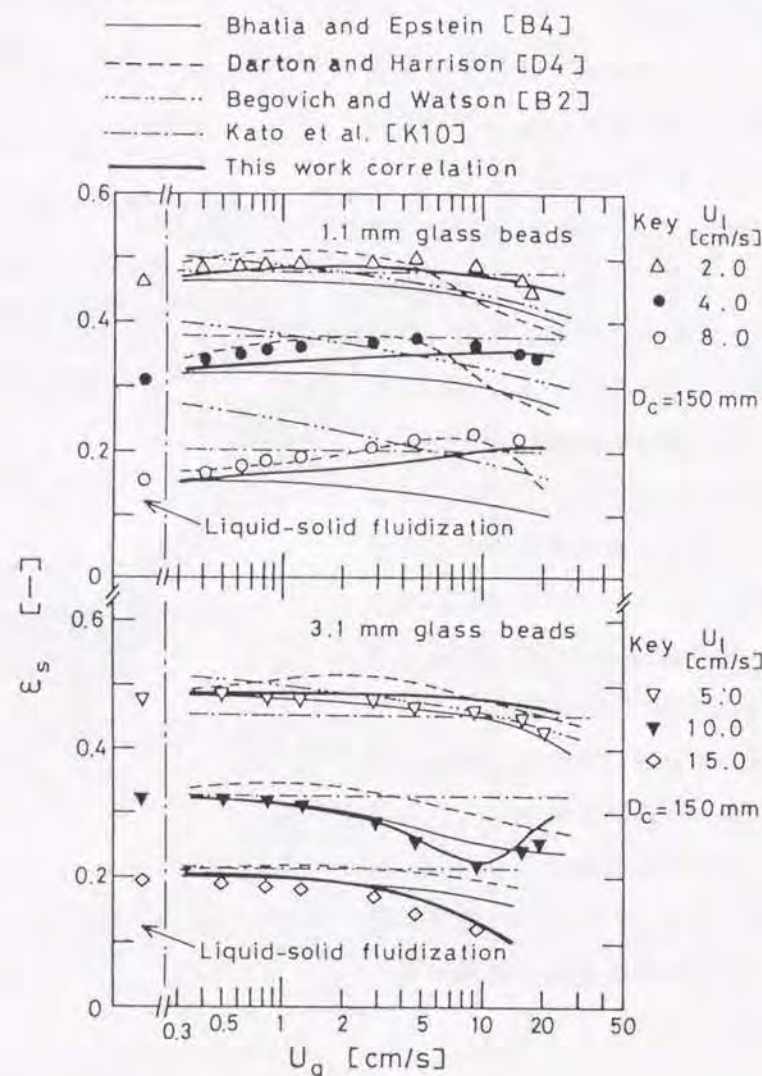


Fig.2-13 Variation of solid holdup with gas flow rate in a three-phase fluidized bed.

転ずる。一方、 U_l が小さい合一気泡流では、層空隙率がもともと小さいところに通気による ϵ_g の増大効果が加わったため、もはや小粒子を用いたときのような層の収縮は起こらなくなったと考えられる。

ϵ_l の場合と同様に、 ϵ_s についても既往の相関式のうちの代表的なもの(Tables1-1,1-2参照)を用いて推定した値を、本実験値と比較した。一般に、Bhatiaら[B4]及びDartonら[D4]のウェイクモデルは本実験値を比較的良く相関している。一方、Begovichら[B2]及びKatoら[K10]の実験式は限られた操作条件でしか適用できない。例えば、Begovichら[B2]の実験式は $\epsilon_s>0.4$ においてのみ適用可能であり、Katoら[K10]の実験式は ϵ_s に対する U_g の影響を考慮に入れないため、 U_g に対して ϵ_s の変化の小さい低 U_g 域でのみ適用可能であった。これらの既往の相関式を用いて推定した ϵ_s の本実験値に対する相対標準偏差は以下の通りである。

	$D_c=150\text{mm}$	$D_c=74\text{mm}$
Bhatiaら[B4]	0.15	0.13
Dartonら[D4]	0.17	0.14
Begovichら[B2]	0.45	0.92
Katoら[K10]	0.19	0.56

2. 3 3相流動層およびスラリー気泡塔の流動モデル

2. 3. 1 モデルの展開

2. 2節の結果から、3相流動層とスラリー気泡塔では、見かけ上流動状態やホールドアップ等の流動特性に大きな相違が見いだされた。スラリー気泡塔においては、沈降拡散モデルを適用し、これによって低粒子濃度域の ϵ_s の軸方向分布を良好に説明出来た。3相流動層の各相ホールドアップの挙動は、ウェイクモデルによってほぼ説明できることがわかった。一方、それらの操作の境界領域では、両者の中間的状态が現れることもわかった。

Katoら[K10]は、3相流動層上部の希薄粒子層領域における軸方向粒子濃度分布に沈降拡散モデルを適用した。しかし、彼らのモデルでは濃厚粒子層と希薄粒子層との関係が明らかにされず、両者が別々に検討されている。元来、希薄粒子層は、濃厚粒子層の粒子が層内の循環流動や乱流拡散のために、上方へ飛散して形成させられたものであるから、両者を相互に関連付けて考える必要がある。

ウェイクモデルは、ホールドアップの挙動を説明するために、スラリー気泡塔の操作領域にまで拡張して使用することはできない。しかも、著者はウェイクモデルを3相流動層に適用する場合においても、以下の二つの問題点があると考えた。

(1) モデルパラメータである k (=ウェイク容積/気泡容積)及び x (=ウェイク中の粒子ホールドアップ率)は、

ドアップ/液固流動層領域の粒子ホールドアップ)の値をアジャスタブルパラメータとして経験的に決定しなければならない。

(2) ウェイクの挙動は、主に2次元流動層を用いてガス流速の小さい条件で調べられてきた。しかし、このようなウェイクが、円筒型の流動層でガス流速の大きい条件下でも現れるか疑わしい。特に粒子径が小さい場合、気泡の合一・分裂が活発に起こるので、ウェイクが形成されたとしても、気泡が直ちに合一・分裂を繰り返し、ウェイク中の粒子は周囲と活発に交換されてしまう。そうすると、ウェイクの存続は極めて困難となる。

しかし一方で、スラリー気泡塔から3相流動層にわたる広い操作条件下で共通して現れる流動現象として、気泡流動様式が不均一気泡流となることが挙げられる。即ち、気泡の合一・分裂が活発に起こり、層内の液固層の中に塔中心部で上昇流、壁近傍で下降流となる循環乱流流動が生じていることである。著者はこの点に着目して、塔内の粒子挙動を説明するために、以下の2つの流動域に分けてモデル化する。

(1) 3相流動層の分散気泡流域

(2) 不均一気泡流域

(a) 3相流動層の分散気泡流域に対してのモデル化

まず、3相流動層の分散気泡流域は、全操作領域の中で特異な流動状態である。ここでは、気泡群の粒子層に対する攪乱作用はほとんどなく、通気による流動層内空隙の増加以外は、気相からの層内の流動に対する直接的な作用はほとんどない。従って、気相を除いた液固流動層領域において、液の上昇速度と粒子の沈降速度が釣り合っていると考えることができ、ここでのホールドアップの挙動は、Richardson-Zaki[R4]の式(Eq.(2-6))を3相系に対して修正した式 $U_1/(1-\epsilon_g)=U_1\phi_1^n$ で表すことが出来る。これを变形して次式(本論文では修正 Richardson-Zaki式と呼ぶ)を得る。

$$V_{zs}=V_l=U_1\phi_1^{n-1} \quad (2-17)$$

ただし、 V_{zs} :粒子群の沈降速度、 V_l :液の線速度($=U_1/\epsilon_l$)である。また、 $\phi_1=\epsilon_l/(1-\epsilon_g)$ であり、気相部分を除いた領域での液ホールドアップを表している。このモデルから、粒子ホールドアップは流動層全領域にわたって均一であり、その上部には希薄粒子層は形成されない結果が得られる。

(b) 不均一気泡流域に対してのモデル化

次に、不均一気泡流動域は3相流動層の合一気泡流、スラリー気泡塔の不均一気泡流、及び

小規模の塔を用いた3相流動層、スラリー気泡塔操作に共通して現れるスラグ流を含む主要な流動様式である。本流動様式をモデル化する場合、考慮すべき特徴として以下の2点を取り上げる。

(i) 塔内に発達した循環乱流流動が生じている。

(ii) 粒子層は軸方向に混合拡散の影響を受ける。

以上の特徴を基に、塔全体における ϵ_s の軸方向分布を表すために粒子に関する物質収支をとると、沈降拡散モデルに帰着し次式が得られる。

$$E_{zs}\frac{d^2\epsilon_s}{dz^2}+(V_{zs}-V_l)\frac{d\epsilon_s}{dz}=0 \quad (2-18)$$

ここで、 E_{zs} :粒子の軸方向混合拡散係数であり、粒子群の沈降速度 V_{zs} は循環流動の影響を受ける。

塔高が十分に大きい場合、希薄粒子層領域においてEq.(2-18)を解くと、

$$\epsilon_s/\epsilon_{sD}=\exp\{-(V_{zs}-V_l)(z-H_D)/E_{zs}\} \quad (2-19)$$

を得る[K10]。ここで、添字Dは濃厚粒子層における値を意味する。従って、 H_D は濃厚粒子層の見かけの高さであり、次式で与えられる。

$$H_D=W/(\rho_s A \epsilon_{sD}) \quad (2-20)$$

すなわち、 $z < H_D$ の塔下部において濃厚粒子層($\epsilon_s=\epsilon_{sD}$)が形成され、この場合、固定座標系から見ると、粒子の沈降速度と液の上昇速度が見かけ上釣り合っているから次式が成立する。

$$V_{zs}=V_l=U_1/\epsilon_l \quad (2-21)$$

従って、濃厚粒子層及び希薄粒子層を合わせた全粒子層領域に対して、 ϵ_s の軸方向分布を与える基礎式は、近似的に次式で与えられる[K10]。

$$\epsilon_s=\epsilon_{sD}/[1+\exp\{(V_{zs}-V_l)(z-H_D)/E_{zs}\}] \quad (2-22)$$

Eq.(2-22)の未知パラメータは V_{zs} 、 ϵ_{sD} 及び E_{zs} である。これらのパラメータのうち、循環流動状態下での V_{zs} に対する粒子濃度の影響を求めるために、さらに以下のようにモデルを展開した。

いま、循環流動状態下で、粒子の沈降と液の上昇流とが釣り合っているとき、塔内局所における粒子の運動を模式的に示すと Fig.2-14 のように示すことができる。これを基に液と粒子の局所の流れ状態を断面平均して収支をとると、粒子の正味の流速は 0 であるから、

$$\frac{1}{\pi R_w^2} \int_0^{R_w} 2\pi r (v_p - v_l) \phi_s dr = 0 \quad (2-23)$$

が成立する。ただし、 v_l は塔内局所の液の上昇速度であり、 v_p は塔内局所における液に対する粒子沈降速度（即ち局所における液に対するスリップ速度）である。また $\phi_s = \epsilon_s / (1 - \epsilon_g)$ である。 ϕ_s は半径方向に対して一様であると仮定し、Eq.(2-23)を変形すると、

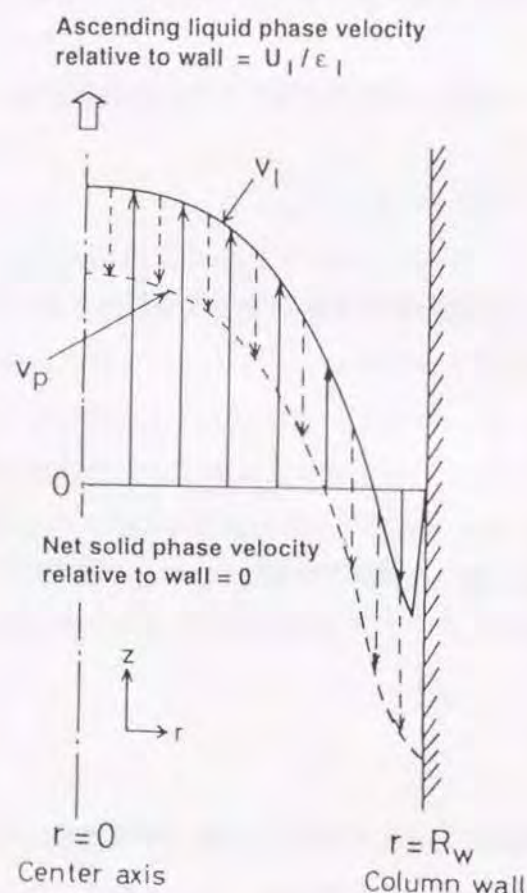


Fig.2-14 Recirculating flow pattern of liquid and solids in three-phase fluidized bed.
solid line : local liquid velocity relative to wall
dotted line : settling velocity of solid particles relative to liquid

$$\frac{1}{\pi R_w^2} \int_0^{R_w} 2\pi r v_p dr = \frac{1}{\pi R_w^2} \int_0^{R_w} 2\pi r v_l dr \quad (2-24)$$

Eq.(2-24)の左辺は v_p の半径方向平均値であるから、これを V_p とおく。一方、Eq.(2-24)の右辺は循環流理論[M6,U3]により、見かけ上スリップ速度の増大の効果が現れ以下のように与えられる。

$$U_l / \epsilon_l + v^*$$

ただし、

$$v^* = \frac{1}{192} \cdot \frac{g D_c^2 \bar{\epsilon}_g^2}{\nu_t (1 - \bar{\epsilon}_g)} \quad (2-25)$$

であり、循環流によって生ずる正味の流速増分である。Eq.(2-25)中の ν_t は乱流動粘度である。Miyauchiら[M6]は、Ueyamaら[U3]の実験データを再整理し、 ν_t の相関式を次式で与えている。

$$\nu_t = 0.128 D_c^{1.70} \quad (2-26)$$

ただし、 ν_t [cm²/s]、 D_c [cm]である。以上により、

$$V_p = U_l / \epsilon_l + v^* \quad (2-27)$$

を得る。即ち、循環流動状態下では、粒子沈降速度は循環流動から生ずる正味の流速増分だけ循環流動がない場合よりも増加したことになる。

次に、Eq.(2-27)の関係を濃厚粒子層中の粒子群の運動に適用すると、濃厚粒子層中のホールドアップの挙動は、Eq.(2-17)に対して粒子群の沈降速度を循環流による増分 v^* で補正されて、次式で表される。

$$V_{zs} = U_l \phi_{lD}^{n-1} + v^* \quad (2-28)$$

Eq.(2-28)を修正Richardson-Zaki式(Eq.2-17)の形に書き換えると、不均一流動域にも拡張して適用できる次式を得る。

$$V_{zs} = V_l = V_l' \phi_{lD}^{n-1} \quad (2-29)$$

これを本論文では拡張Richardson-Zaki式と呼ぶ。当然ガス流速がゼロでは $v^*=0$ であるから、拡張Richardson-Zaki式はRichardson-Zaki式を包含する。

ここで、 V_t' は循環流動状態下での粒子の終末沈降速度であり、Eqs.(2-28),(2-29)から次式で与えられる。

$$V_t' = U_i + v^* / \phi_{ID}^{n-1} \quad (2-30)$$

一方、希薄粒子層領域においても、濃厚粒子層領域と同様に循環流動が生じている。そのため、拡散によって濃厚粒子層から飛散させられた粒子が下降するとき、循環流によって沈降速度が正味 v^* だけ増大する。従って、希薄粒子層領域においても V_{zs} はEq.(2-29)と類似な次式で表される。

$$V_{zs} = V_t' / \phi_{IL}^{n-1} \quad (2-31)$$

ここで、添字 s は希薄粒子層における値を意味する。

2. 3. 2 モデルの実験データへの適用

(a) 濃厚粒子層中の粒子沈降速度 V_{zs}

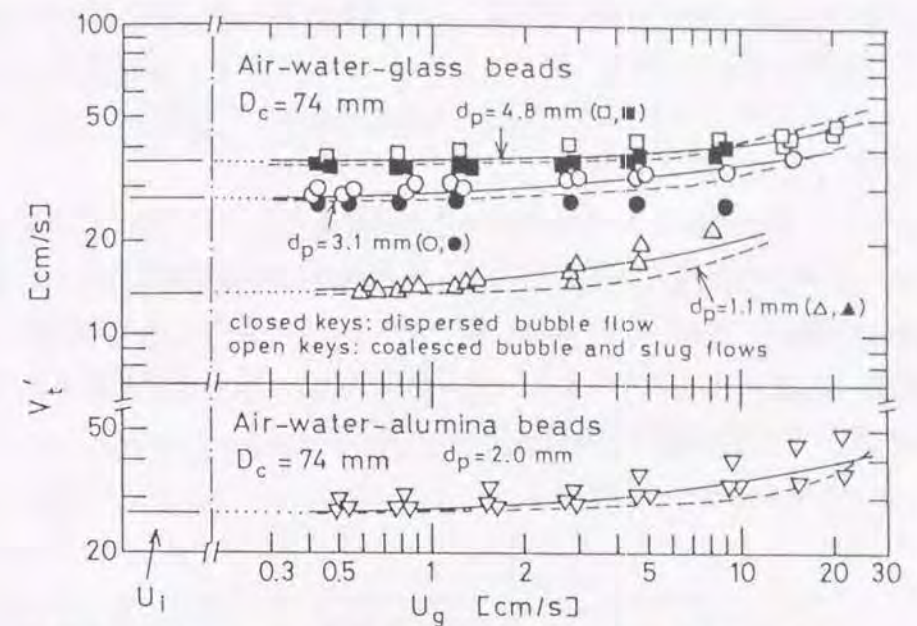
まず、不均一気泡流域における濃厚層の実験データから V_t' を求めてみる。 V_t' はEq.(2-29)を変形した式 $V_t' = V_l / \phi_{ID}^{n-1} = (U_l / \epsilon_l) / \phi_{ID}^{n-1}$ の右辺の各変数に実験値を代入して得ることが出来る。その結果をFig.2-15(a),(b)に示した。

Fig.2-15(a)から、分散気泡流域における V_t' は U_i に等しいことがわかる。即ち、Eq.(2-17)の関係が成立する。次に、不均一気泡流動域の V_t' は U_g の増大と共に U_i の値から徐々に増大し、高 U_g 域では、 V_t' の U_g に対して増大する割合が大きくなる。また、 V_t' の U_g に対する増加率は、 d_p の減少によっても増大する。さらに、 V_t' は同一 d_p においては U_i にまったく影響されない。即ち粒子濃度にも影響されないことを示しており、 V_t' の物理的意味からして当然の結果と言える。以上の結果から、不均一気泡流動域の V_t' は U_g 及び U_i のみの関数として、次の実験式で良好に表すことが出来た。

$$V_t' = U_i (1 + 3.3 U_g / U_i)^{0.30} \quad (2-32)$$

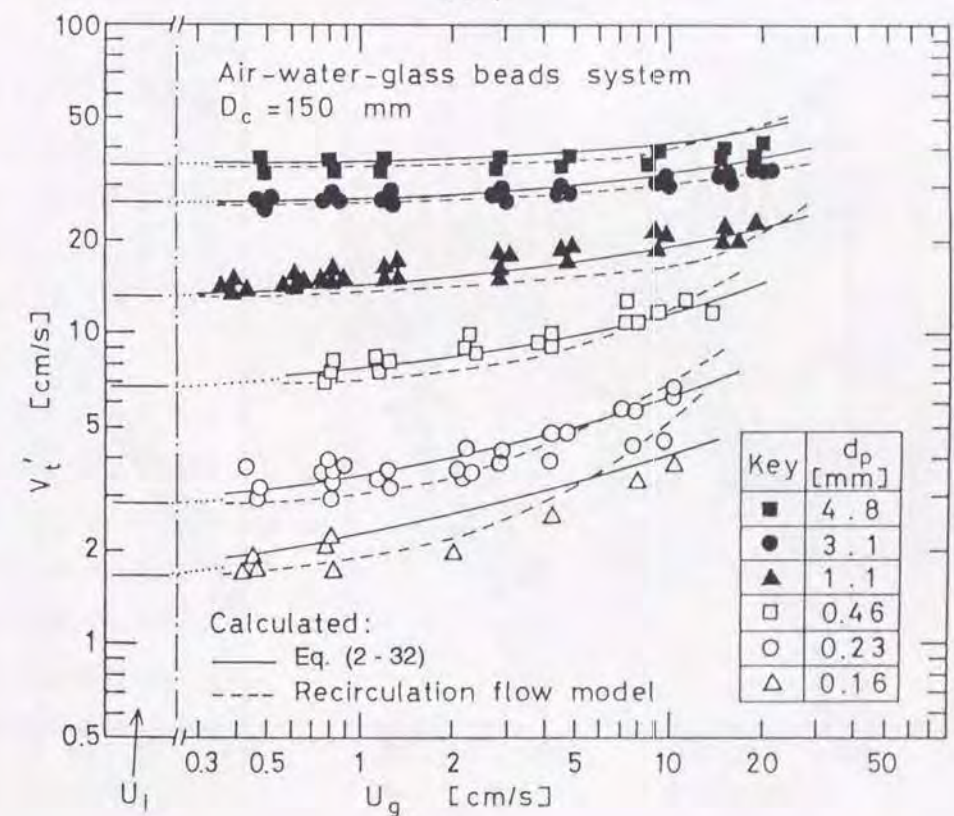
Eq.(2-32)による V_t' の計算値を、Fig.2-15(a),(b)に実線で示した。

一方、本流動モデルに基づいて、Eq.(2-26)から推定した v_t の値をEq.(2-25)に代入して v^* の



Calculated: — Eq. (2-32), ---- Recirculation flow model

(a)



(b)

Fig.2-15 Apparent particle settling velocity at unit voidage of the three-phase fluidization. (a): $D_c=74$ mm, (b): $D_c=150$ mm

値を求め、これをEq.(2-30)に代入して得た V_L' の計算値は、Fig.2-15(a),(b)に破線で示したように、 V_L' の実験値をよく説明しており、更に、Eq.(2-32)の V_L' の実験式からの値とも良好に一致した。Eq.(2-32)にはモデルパラメータやガスホールドアップのデータが不要であり実用的である。

Fig.2-16に、3相流動層における V_L 対 ϕ_{ID} の関係を示し、上で述べたモデルとの一致性を調べた。まず、分散気泡領域における V_L 対 ϕ_{ID} の関係は、液固流動層のそれと同一線上にあり、修正Richardson-Zaki式 (Eq.2-17)で良好に現された。一方、不均一気泡流動域における V_L 対 ϕ_{ID} の関係は、 U_g をパラメータとして、液固系のそれと平行な直線関係で表され、さらに拡張Richardson-Zaki式 Eqs.(2-29),(2-32)で良好に現された。

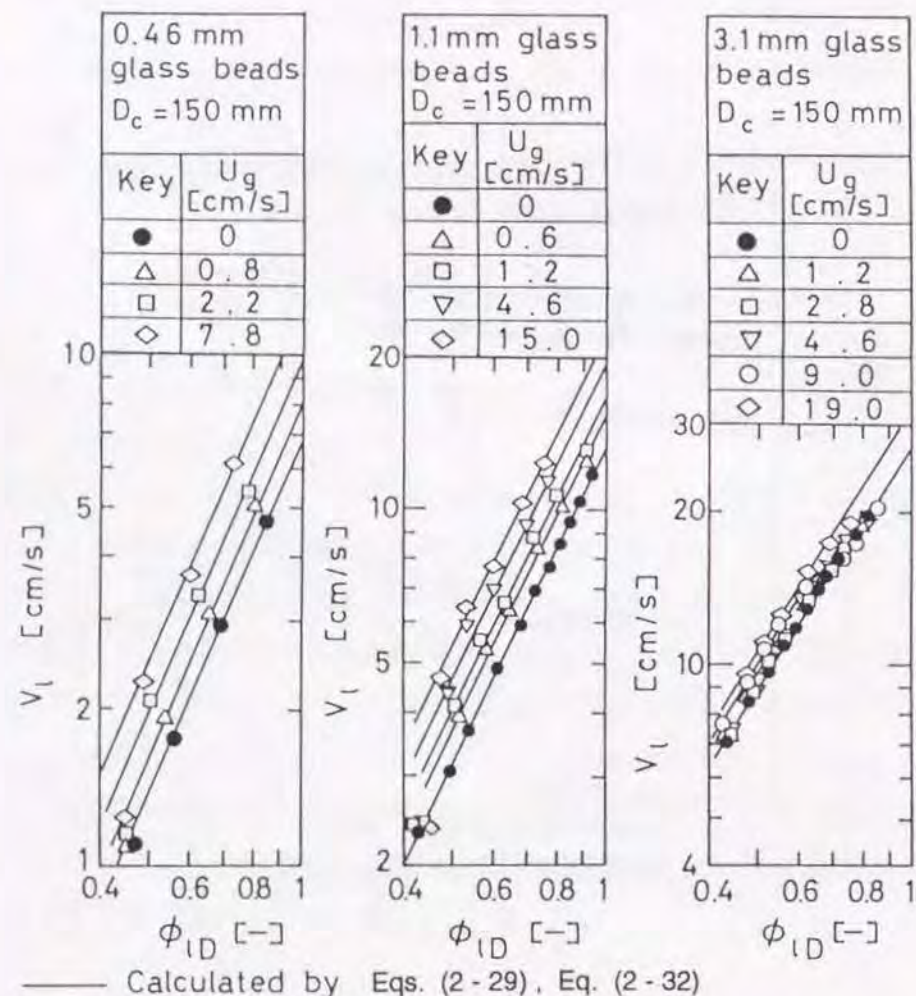


Fig.2-16 Relationship between V_L and ϕ_{ID} in three-phase fluidized beds (Extended Richardson-Zaki plot).

これらの結果から、3相流動層の濃厚粒子層領域に対しても、粒子の終末沈降速度を層内に形成される循環流動の影響を考慮にいれて補正することによって、液固流動層に対して適用されるRichardson-Zaki式を拡張して適用できることがわかった。

(b) 希薄粒子層中の粒子沈降速度 V_{zs}

次に、不均一気泡流動域の希薄粒子層領域における粒子沈降速度 V_{zs} を、Eqs.(2-31),(2-32)を用いて求めFig.2-17に示した。ここで、 ϕ_{IL} の値には、 $\epsilon_g, \epsilon_l, \epsilon_s$ の軸方向分布の実測値から、濃厚粒子層が形成される場合には、 ϵ_s の値が $0.6\epsilon_{sD} \sim 0.001$ の範囲にある軸方向領域にわたって、一方、濃厚粒子層領域が形成されない場合には、層底面から $\epsilon_s = 0.001$ となる高さまでの軸方向領域にわたって、それぞれ $\epsilon_l/(1-\epsilon_g)$ を積分平均した値を採用した。ここで、 $\epsilon_s < 0.001$ の領域は、実質的に気液2相流と見ることが出来る。

Fig.2-17から、希薄粒子層領域における V_{zs} は、 ϕ_{IL} の影響を受けるが、 U_g の増大と共に徐々に増大することがわかる。 V_{zs} の本結果を既往のデータと比較検討するために、Katoら[K10]及びSmithら[S9]の相関式から、対応する操作条件に対して計算される V_{zs} の値を同図中に示したが、本実験値は、Katoら[K10]の式による計算値と良い一致を示している。

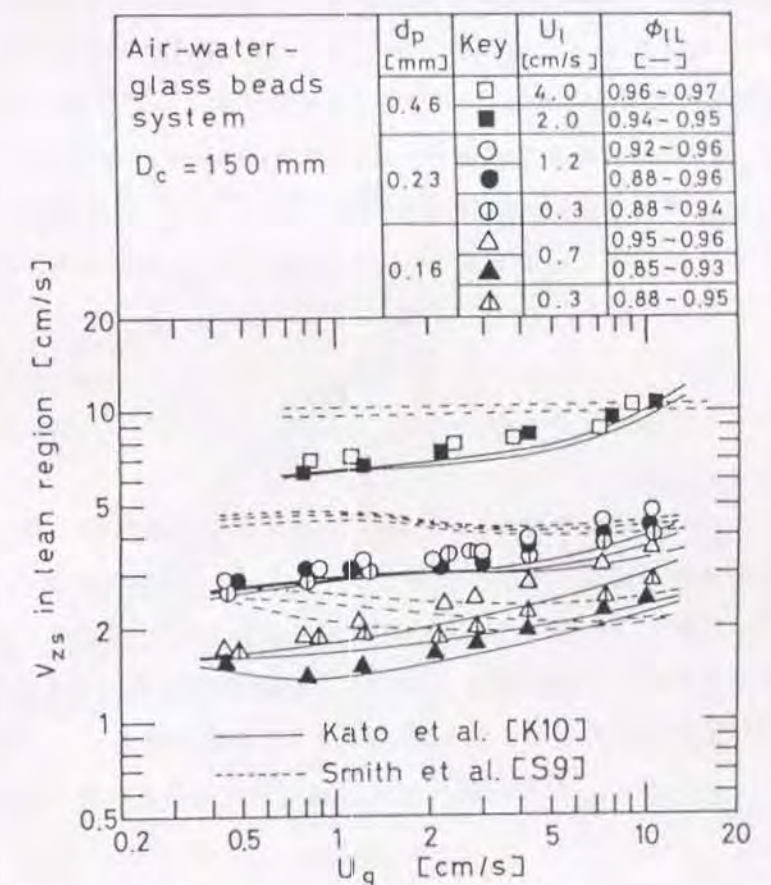


Fig.2-17 Variation of V_{zs} with U_g in the lean region of the slurry bubble column.

(c) 濃厚粒子層における液ホールドアップ ϵ_{lD} と粒子ホールドアップ ϵ_{sD}
 3相流動層の分散気泡流域ではEq.(2-17)から、 ϵ_{lD} は次式で与えられる。

$$\epsilon_{lD} = \left\{ \frac{U_l(1 - \epsilon_{gD})^{n-1}}{U_i} \right\}^{1/n} \quad (2-33)$$

また不均一気泡流動域では、Eqs.(2-29),(2-32)から ϵ_{lD} は次式で与えられる。

$$\epsilon_{lD} = \left\{ \frac{U_l(1 - \epsilon_{gD})^{n-1}}{U_i(1 + 3.3 U_g/U_l)^{0.30}} \right\}^{1/n} \quad (2-34)$$

ここで、Eqs.(2-33),(2-34)には未知数として ϵ_{gD} を含んでいる。ところで3相流動層の ϵ_{gD} の相関式としてEq.(2-16)を提出した。一方、スラリー気泡塔の ϵ_g に関しては本章では十分な検討が行えなかったが、第3章において、高濃度スラリー気泡塔の ϵ_{gD} の推定には、Koideら[K21]の相関式(Table 1-2参照)が適用できることを述べている。そこで、以下に述べる ϵ_{lD} 、 ϵ_{sD} の相関に必要なガスホールドアップはこれらの相関式によって推定した。

ϵ_{lD} に関するEq.(2-33)またはEq.(2-34)と ϵ_{gD} に関するEq.(2-16)またはKoideら[K21]の式を連立させて解くことによって、 ϵ_{lD} 及び ϵ_{gD} の推定値が得られ、これらから ϵ_{sD} も次式によって推定できる。

$$\epsilon_{sD} = 1 - \epsilon_{gD} - \epsilon_{lD} \quad (2-35)$$

Figs.2-18, 2-19に、 $D_c=150\text{mm}$ における濃厚粒子層の ϵ_{lD} 、 ϵ_{sD} の本実験値と上記の方法による推定値との比較を示す。 ϵ_{lD} 、 ϵ_{sD} は本推定法によって良好に表されることがわかった。しかし、 $d_p \leq 0.23\text{mm}$ の微粒子を含んだ場合で、低 ϵ_{lD} 域における ϵ_{lD} の実験値が推定値よりも大きく、逆に高 ϵ_{sD} 域で ϵ_{sD} の実験値が推定値よりも小さい場合があった。これは粒子層が混合拡散の影響を強く受けたためと考えられる。

ϵ_{lD} 及び ϵ_{sD} の本相関法による推定値の実験値に対する相対標準偏差は以下の通りである。

	$D_c=150\text{mm}$	$D_c=74\text{mm}$
ϵ_{lD}	0.055	0.10
ϵ_{sD}	0.11	0.11

これらの標準偏差の値は、先に示した既往の相関式のいずれによるものより小さい。Figs.2-

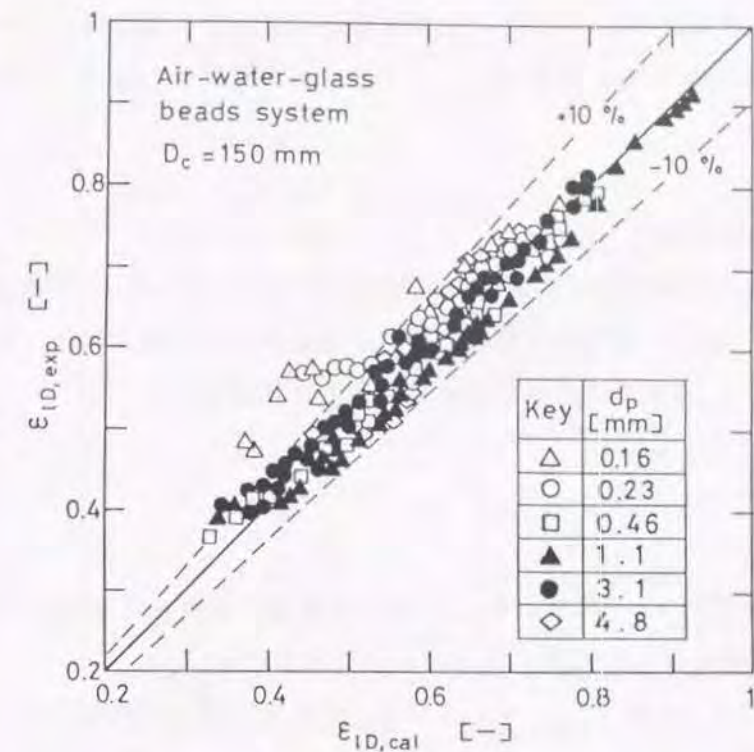


Fig.2-18 Comparison of ϵ_{lD} values estimated with those observed in the three-phase fluidization.

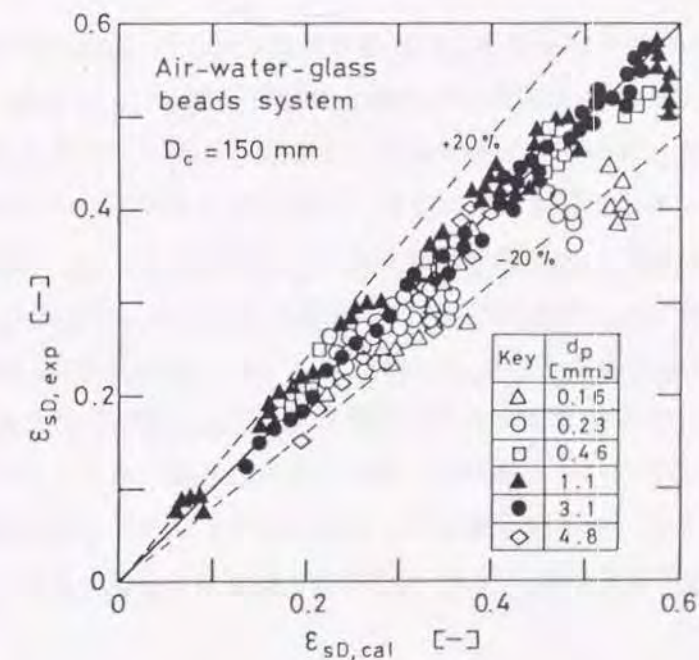


Fig.2-19 Comparison of ϵ_{sD} values estimated with those observed in the three phase fluidization.

12,2-13に示した3相流動層の ϵ_{ID} 及び ϵ_{sD} の実験値に対応する推定値を、本相関法によって求めて同図中に太実線で示した。本相関法による推定値は実験値と極めて良好に一致していることがわかる。

(d) 粒子混合拡散係数 E_{zs}

スラリー気泡塔から3相流動層にわたる広い操作条件で測定された ϵ_s の軸方向分布の推定にEq.(2-22)を適用する。但し、塔底部に濃厚粒子層が形成されない場合には、次に示す通常の沈降拡散モデルに基づく ϵ_s の軸方向分布を表す基礎式を適用する。

$$\epsilon_s = \epsilon_{s0} \exp[-(V_{zs} - V_l)z/E_{zs}] \quad (2-36)$$

ここで、 ϵ_{s0} は塔底面での ϵ_s であり、Eq.(2-36)を全塔長にわたって積分して得られる粒子の全質量が投入粒子全質量に等しいとおくことによって得られる。

Eq.(2-22)の未知パラメータは ϵ_{sD} 、 V_{zs} 及び E_{zs} であり、Eq.(2-36)の未知パラメータは V_{zs} 及び E_{zs} である。これらの未知パラメータのうち、 V_{zs} 及び ϵ_{sD} はその推定法を提出したので、それによって得ることが出来る。残る E_{zs} は、 ϵ_s の軸方向分布についての実験値と、それに対応するEq.(2-22)或はEq.(2-36)を適用して得られる ϵ_s の計算値との残差2乗総和を最小にする最小2乗法によって決定した。

Fig. 2-20に以上のようにして求めた E_{zs} の結果を示す。 E_{zs} は U_g の増大と共に大きく増大する。特に、 $U_g \leq 2 \text{ cm/s}$ で、 U_g の低下に伴う E_{zs} の低下が著しい。これは $U_g \leq 2 \text{ cm/s}$ では、気泡による粒子層の攪乱作用が不十分であることを示しており、このガス流速範囲は、液固回分式スラリー気泡塔における臨界ガス流速 U_g^* 以下の領域に対応している(Fig. 1-8参照)。

ここで、本研究で得られた E_{zs} を液混合拡散係数 E_{zl} と比較した。Fig. 2-20に、Katoら[K5]が提出したスラリー気泡塔の E_{zl} の相関式による計算値を示す。 E_{zs} は、低 U_g 域で E_{zl} よりも1桁小さいが、 U_g の増大と共に急速に E_{zl} に接近し、 $U_g \geq 10 \text{ cm/s}$ では、両者はほぼ一致するまでになる。更に、 E_{zs} の本実験値を3相流動層の E_{zl} (Fig. 1-9参照)と比較すると、 E_{zs} が低 U_g 域で E_{zl} よりも若干小さいことを除いて、両者はほぼ同じ値であることがわかる。

更に既往の E_{zs} に関するデータと比較検討し、本実験結果を基に E_{zs} の相関式を作成した。Katoら[K10]は、使用した粒子の Re_t が2.5~640にある場合の E_{zs} は、次式によって相関できるとした。

$$U_g D_c / E_{zs} = \{13 F r / (1 + 8 F r^{0.85})\} (1 + 0.023 F r^{-0.8}) \quad (2-37)$$

但し、 $F r = U_g / \sqrt{g D_c}$ である。Eq.(2-37)による E_{zs} の計算値をFig. 2-20に破線で示した。

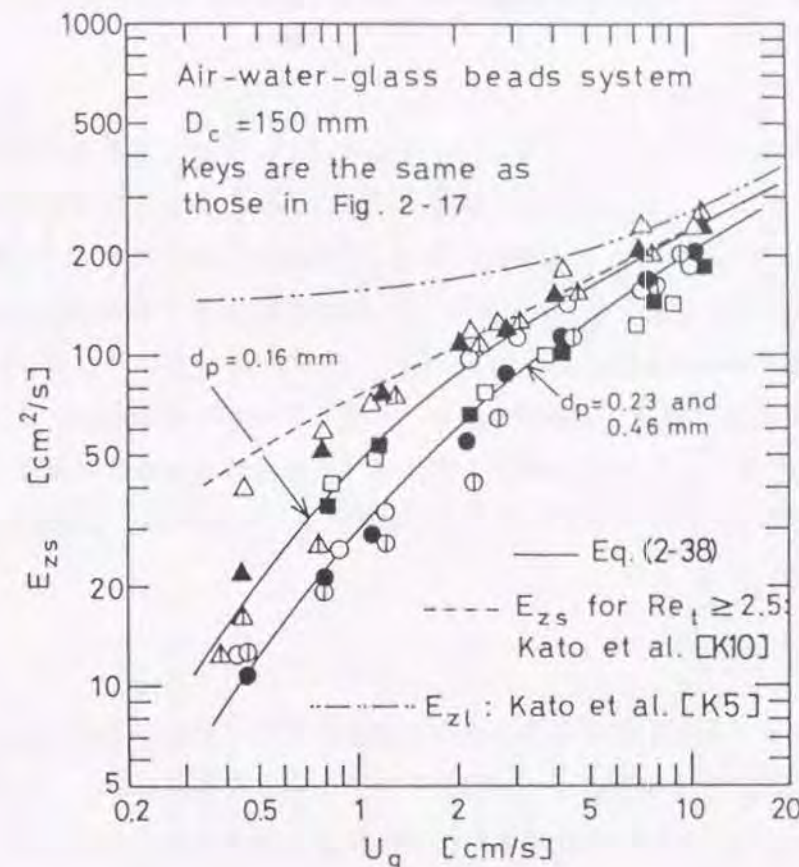


Fig. 2-20 Variation of E_{zs} with U_g for various particles in a slurry bubble column.

Katoら[K10]の E_{zs} は、 $d_p = 0.16 \text{ mm}$ 、 $U_g \geq 2 \text{ cm/s}$ の条件における本実験値と良く一致した。しかし、彼らは E_{zs} を $U_g < 2 \text{ cm/s}$ では得ていないので、この低 U_g 域にまで拡張してEq.(2-37)を適用するのは問題がある。そこで、 E_{zs} に及ぼす d_p 、 U_g の影響を考慮してEq.(2-37)を修正し、 E_{zs} の新相関式を以下のように提出した。

$Re_t \leq 5$ に対して、

$$U_g D_c / E_{zs} = \{13 F r / (1 + 8 F r^{0.85})\} \{1 + Re_t (0.009 F r^{-0.8} + 8 \times 10^{-5} F r^{-1.8})\} \quad (2-38a)$$

$Re_t > 5$ に対して、

$$U_g D_c / E_{zs} = \{13 F r / (1 + 8 F r^{0.85})\} (1 + 0.045 F r^{-0.8} + 4 \times 10^{-4} F r^{-1.8}) \quad (2-38b)$$

Eq.(2-38)を用いて計算した E_{zs} の値をFig.2-20に実線で示した。計算値は実測値と良く一致していることがわかる。

以上のように、流動モデルのパラメータ ϵ_{sD} 、 V_{zs} 及び E_{zs} の値を、操作条件から推定できるようになったことから、 ϵ_s の軸方向分布の推定が可能となる。その計算過程を要約した流れ図をFig.2-21に示す。Figs.2-4(a)-(c)に例示した ϵ_s の軸方向分布の結果に、本推定法を適用して計算した値を同図中に太破線で示した。更に、 ϵ_s の軸方向分布の数例の実測値に対して、本推定法による計算値を求めて比較したものをFig.2-22に示す。これらの図から、本推定法による ϵ_s の軸方向分布の計算値は、実験値と良好に一致していることがわかる。

なお、Fig.2-21の流れ図は、3相流動層およびスラリー気泡塔の全操作領域に対して適用できるように一般化して示したものであるので、操作条件に応じて途中の計算過程を省略できる。

結 言

3相流動層からスラリー気泡塔にわたる広範な流動域における気液固各相のホールドアップ ϵ_g 、 ϵ_l 及び ϵ_s を測定し、その挙動について検討し以下の知見を得た。

(1) 3相流動層の ϵ_g は、気泡流動様式毎に異なる複雑な挙動を示したが、ドリフトフラックス V_D 対 ϵ_g の関係は、流動様式に対応した特徴的な線図として表された。更に、このドリフトフラックスモデルに基づいて3相流動層の ϵ_g を相関する式を得た。

(2) ϵ_s の軸方向分布は気液固の操作条件によって、狭義の3相流動層型の塔底部に濃厚粒子層だけが出来る形態から、通常の懸濁気泡塔型の塔底から塔頂に向かって ϵ_s が徐々に減少する形態まで複雑に変化した。特に、スラリー気泡塔操作において塔内粒子濃度を増大させると、塔底部に粒子濃度が軸方向にはほぼ一様な高濃度粒子層と、その上部に粒子濃度が塔頂に向かって急激に減少する希薄粒子層とが形成されるようになる。このような複雑な挙動を示す ϵ_s の軸方向分布は、粒子の循環流動と混合拡散を考慮して新たに考案した流動モデルによって良好に表すことが出来た。本モデルによる ϵ_s の軸方向分布を求める手順をFig.2-21に示した。

(3) (2)で述べた流動モデルから得られる結果として、粒子の終末沈降速度を、通気によって生じる塔内循環流動の影響を考慮に入れて補正することによって、液固流動層におけるRichardson-Zaki式が、不均一気泡流動域の濃厚層領域に対しても拡張して適用できた。これから、3相流動層の ϵ_l を推定する式が得られた。更に、(1)で述べた3相流動層の ϵ_g の相関式と併せ、これらの式を連立させて解くことによって、3相流動層の ϵ_g 、 ϵ_l 及び ϵ_s の値を気液固の操作条件を用いて推定することが可能になった。本推定法は、従来のウェイモデルと比較して、推定誤差を小さくすることが出来るのみならず、流動状態の変化に忠実に対応して各相ホールドアップの挙動を表すことが出来た。

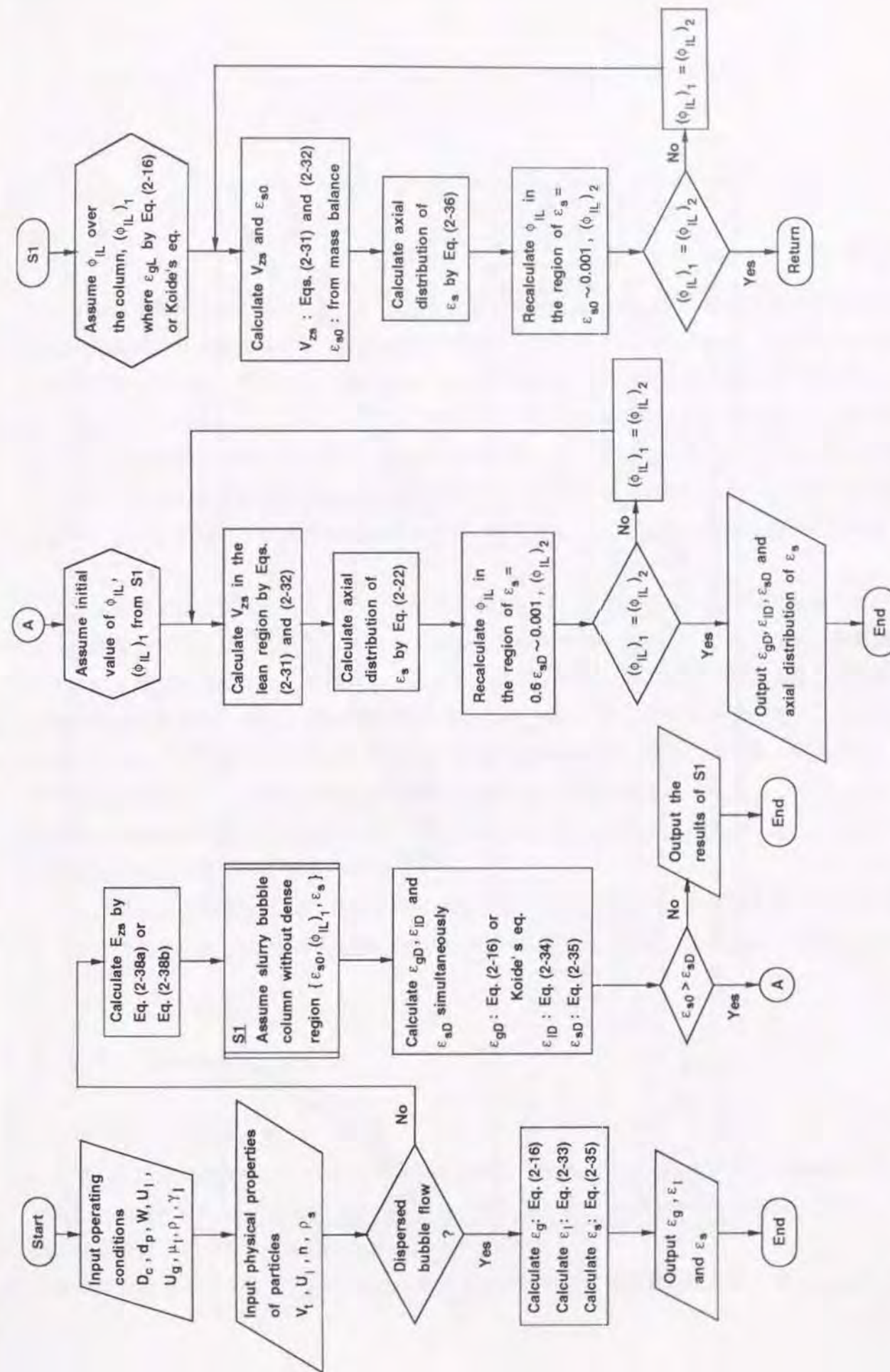


Fig. 2-21 Flow diagram for the estimation of the axial distribution of solid holdup and/or the individual phase holdups.

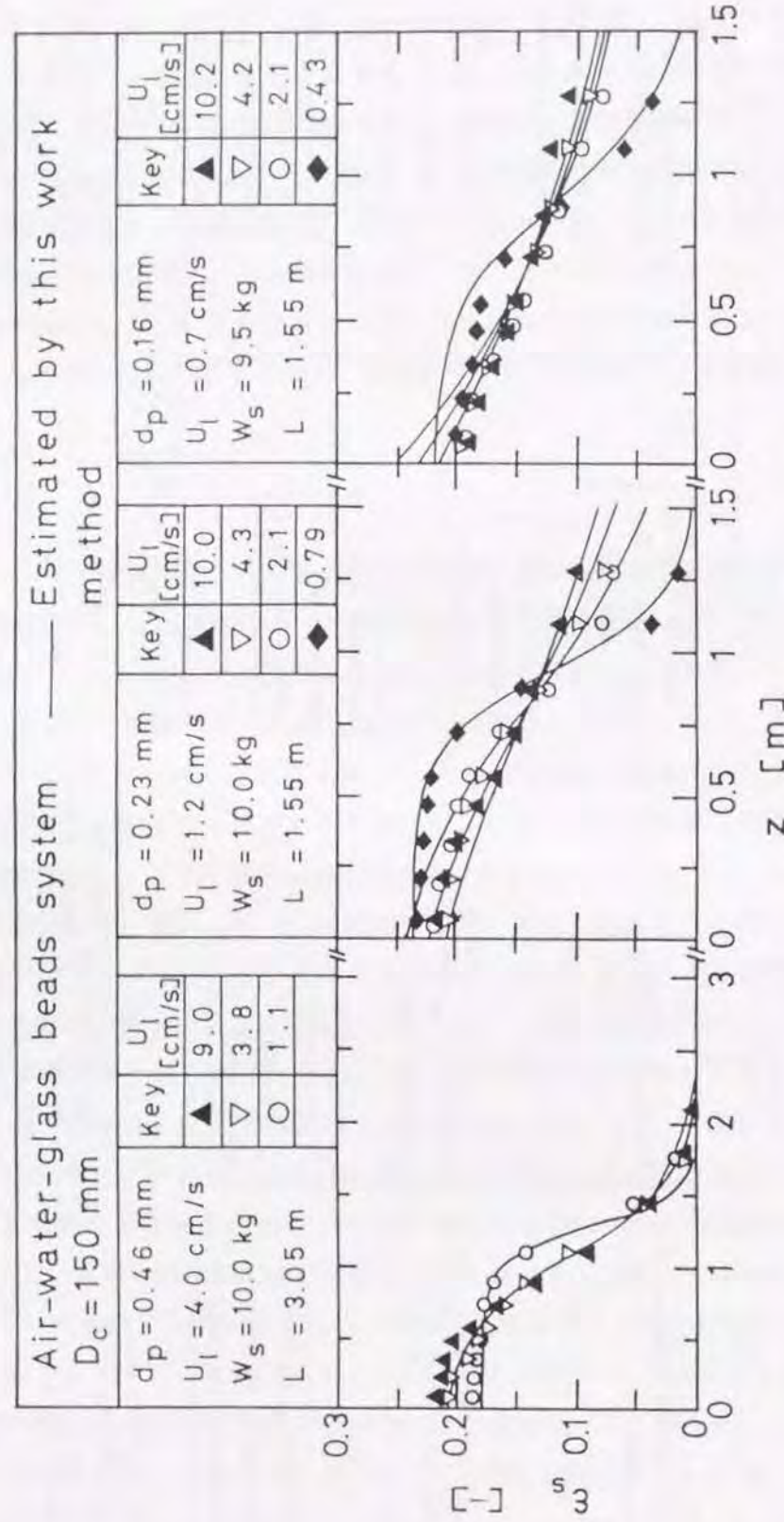


Fig.2-22 Typical example for the estimation results of the axial distribution of solid holdup.

緒言

前章で、3相流動層およびスラリー気泡塔における気液固各相のホールドアップが、気泡流動様式或は流動層の操作条件によって複雑な挙動をとることを示した。また、スラリー気泡塔においては、ガスホールドアップの測定は良い精度で行えなかったため、改めてこれを行う必要があることも指摘した。ところで、ホールドアップの挙動を規定すると考えられる流動状態は、気泡群の挙動と密接に対応していると考えられる。しかも気泡径やガスホールドアップのデータは気液間物質移動現象を調べる上で必要不可欠なデータである。しかし、スラリー気泡塔及びスラリー気泡塔と3相流動層の境界領域の操作における気泡群の挙動を調べた研究報告はほとんどない。

そこで本章では、気泡群の挙動の中で重要と考えられるガスホールドアップ、気泡径及び気泡上昇速度を取り上げ、これらをスラリー気泡塔及びスラリー気泡塔と3相流動層の境界領域に及ぶ広い操作範囲にわたって調べた。ガスホールドアップに関しては、その半径方向分布と断面平均値の挙動を、また、気泡径と気泡上昇速度に関しては、それらの分布形態と分布の平均値の挙動を明らかにした。即ち、気泡群の特性に対する気液の流速、粒子径、粒子濃度、及び液粘度等の影響を、これらの条件を広範囲に変化させて詳細に調べ、ガスホールドアップ、平均気泡径及び平均気泡上昇速度の値に対しては、それらを操作条件を用いて推定出来るように相関式を作成した。

これら気泡特性の測定には、ガスホールドアップ、気泡径、及び気泡上昇速度が同時に測定できる電気探針法[I1,M2,M10,N5,R5,U1,U2,U4]が有効であるので、本研究もこの測定法を用いた。

3.1 実験装置および方法

3.1.1 実験装置

使用した実験装置をFig.3-1に示す。塔本体には、内径0.15mの透明アクリル樹脂製円筒で、塔高1.2、1.7及び3.2mの3種類のものを使用した。塔の構成は第2章にもとの同一であり、これに測定装置として、2点探針電極が取り付けられている。

層内局所において上昇してくる気泡を検出するための2点電気探針電極を、塔の中心軸に向

かって断面上を半径方向に移動できるように製作したトラバーサーに取り付け、これを粒子支持板から0.56mの高さの塔本体部に設置した。電気探針電極の詳細をFig.3-1の右上に示した。探針電極は直径0.25mmの白金線をエポキシ樹脂で絶縁し、直径0.8mmのステンレス鋼製保護管に入れ、その先端部のみ僅かに保護管より露出させ、周囲のエポキシ樹脂を削取り鋭く尖らせたものである。更にステンレス保護管の先端部約25mmを45°下向きに曲げた。2本の探針先端部は鉛直線上にあり、先端間距離は3mmである。探針の対極は、探針と同一高さで探針挿入部と向いあった塔内壁面に張り付けた25mm×100mmのステンレス平板である。

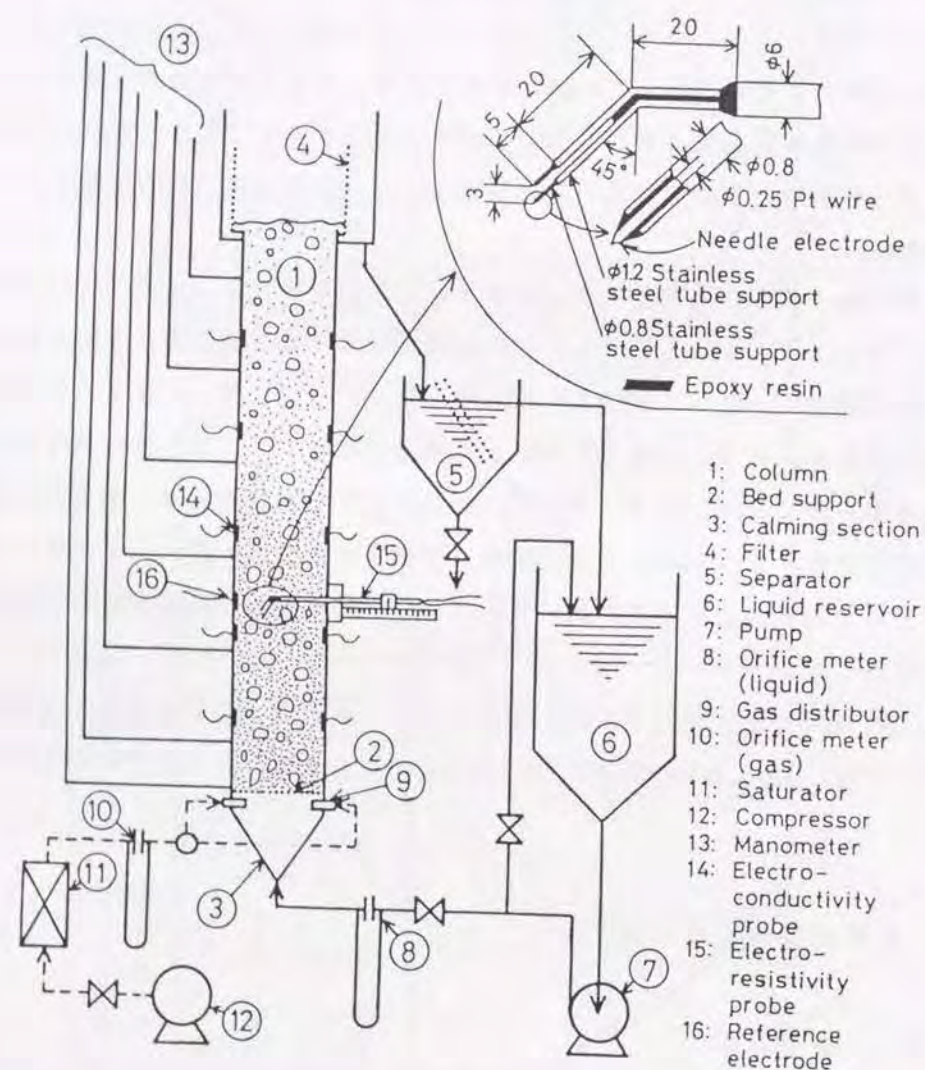


Fig.3-1 Schematic diagram of experimental apparatus.

Table 3-1 Properties of liquids used at 293.2 K

Liquid	ρ_l [kg/m ³]	μ_l [mPa·s]	γ_l [mN/m]
Water	998	1.00	72.8
5GL	1012	1.20	72.4
16GL	1040	1.70	71.5
20GL	1051	1.95	71.2
50GL	1127	6.60	68.8

5GL, 16GL, 20GL and 50GL: 5, 16, 20 and 50 vol% glycerol aqueous solution

Table 3-2 Particle properties of glass beads and experimental conditions

d_p [mm]	Mesh size [mesh]	Liquid	V_t [cm/s]	L [m]	$\bar{\epsilon}_s$ [-]
0.056	200-400	water	0.26	1.2	≤ 0.4
0.16	80-100	water	1.63	1.2, 1.7	≤ 0.4
		5GL	1.42	1.2	≤ 0.13
		16GL	1.07	1.2	≤ 0.13
		20GL	0.94	1.2	≤ 0.13
		50GL	0.29	1.2	≤ 0.2
0.23	60-65	water	2.8	1.7	≤ 0.4
0.46	32-35	water	6.7	3.2	≤ 0.5

液には、水道水及び種々の濃度のグリセリン水溶液を使用した。液の温度は貯槽内で293.2±0.2Kに保った。気体には空気を使用した。粒子には分級したガラス球(密度2500kg/m³)を使用した。使用した液の物性をTable 3-1に、また実験条件をTable 3-2に示した。なお探針による測定を行うに当たって、液の電気電導度を高めるために塩化カリウムを加えた。塔内液の塩化カリウムの濃度は、スラリー粒子濃度や液粘度に応じて約5~10mol/m³の間に調節した。

探針測定に入る前に、第2章と同様の方法により、塔本体における粒子ホールドアップ ϵ_s の軸方向分布を求めた。ここで塔底部の ϵ_s が軸方向にほぼ一様な濃厚粒子層とその上部の ϵ_s が塔頂に向かって急激に減少する希薄粒子層とが形成される場合、探針電極が濃厚粒子層に入るように粒子量を調節した。

3. 1. 2 気泡特性値の測定方法

探針によって検出された気泡信号をマイコンに入力して処理し、以下のように気泡特性値を求めた。局所のガスホールドアップ ϵ_g は、探針電極が気泡を検出した時間の全測定時間に対する比として求められる[11]。また ϵ_g の測定中に検出した気泡個数から、局所の気泡頻度 n_b を求めた。 ϵ_g の半径方向分布は、中心軸上と塔断面積を5等分する半径位置($r=34, 47, 58$ 及び 67mm)の5点で ϵ_g を測定して求めた。この ϵ_g の半径方向分布から、次式によって塔断面平均ガスホールドアップ $\bar{\epsilon}_g$ を求めた。

$$\bar{\epsilon}_g = \frac{2}{R_w^2} \int_0^{R_w} \epsilon_g r dr \quad (3-1)$$

また、 n_b の半径方向分布及びその断面平均値 \bar{n}_b も、ガスホールドアップの場合と同様にして求めた。

気泡の垂直方向高さ(以後、気泡長さと呼ぶ) L_b 及び気泡上昇速度 U_b は、Fig.3-2に示したような2点の気泡通過信号から、次式のよって求められる。

$$U_b = 2l / (\Delta t_1 + \Delta t_2) \quad (3-2)$$

$$L_b = U_b (\tau_1 + \tau_2) / 2 \quad (3-3)$$

ここで、 l は探針電極間距離、 Δt は気泡が2点間を通過するのに要した時間、また τ は気泡が探針を通過するのに要した時間である。

L_b 、 U_b の測定は $r=0, 47$ 及び 67mm の3点で行った。各点で得られた全有効気泡データを集積し、それを算術平均して L_b 、 U_b の断面平均値 \bar{L}_b 、 \bar{U}_b を得た。ところで、塔中心から壁面に向かって気泡の発生頻度が減少するが、各測定点の重みを均一にするために、どの位置での測定時間もほぼ同じになるようにした。塔断面全領域での気泡サンプル総数は50~120の範囲にあった。

3. 2 実験結果および考察

3. 2. 1 ガスホールドアップ ϵ_g と気泡頻度 n_b

Fig.3-3に、スラリー気泡塔におけるガスホールドアップ ϵ_g と気泡頻度 n_b の塔半径方向分布を示す。また、循環流理論[M6,U3]から得られた ϵ_g の半径方向分布に対応する放物線型分布を破線で示して比較した。一般に、スラリー気泡塔における ϵ_g の半径方向分布は塔中心で最大値を示し壁面で0となる、上に凸な形となる。この結果を放物線型分布と比較すると、左側の図の場合、両者はほぼ一致しているが、右側の図の場合には、 $r/R_w=0.4\sim0.8$ の範囲で、実験値は急激に減少しており、両者間の良い一致は得られない。

この原因を他の類似した操作条件の結果も併せて検討したところ、 $\bar{\epsilon}_s \leq 0.13$ の範囲では、塔内の循環流動が活発に起こっていると考えられるが、 $\bar{\epsilon}_s > 0.2$ の領域で、しかも液空塔速度 U_l が余り大きくない場合、スラリーの流動性が著しく低下し、気泡は主に塔中心部を高速で通過し、一方壁近傍では、気泡がスラリーの大きな応力を受け上昇に対して大きな抵抗を受けたために、 $r/R_w=0.4\sim0.8$ の範囲で、 ϵ_g が急激に減少する分布が生じたと考えられる。 n_b の半径方向分布は ϵ_g のそれにほぼ相似であった。

Fig.3-4に、スラリー気泡塔における $\bar{\epsilon}_g$ 対ガス空塔速度 U_g の関係を種々の d_p 、 $\bar{\epsilon}_s$ に対して示す。スラリー気泡塔の $\bar{\epsilon}_g$ は U_g の増大と共に増大し、 $\bar{\epsilon}_s$ の増大と共に減少する。一方、 d_p の $\bar{\epsilon}_g$ 対 U_g の関係に対する影響は、本実験条件の範囲ではほとんど認められない。

次に、Fig.3-4に、気泡塔及びスラリー気泡塔の $\bar{\epsilon}_g$ に関する既往の研究結果を示し、本実験デ

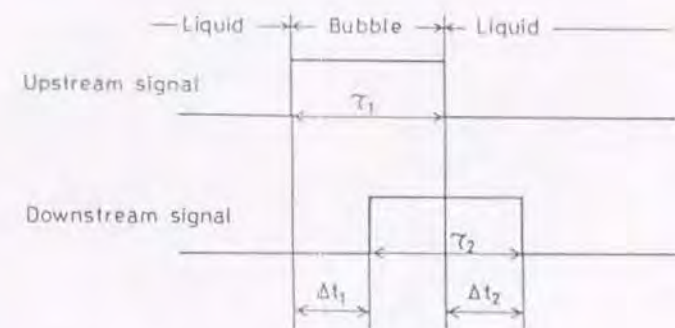


Fig.3-2 Relationship between probe signals for the two probes.

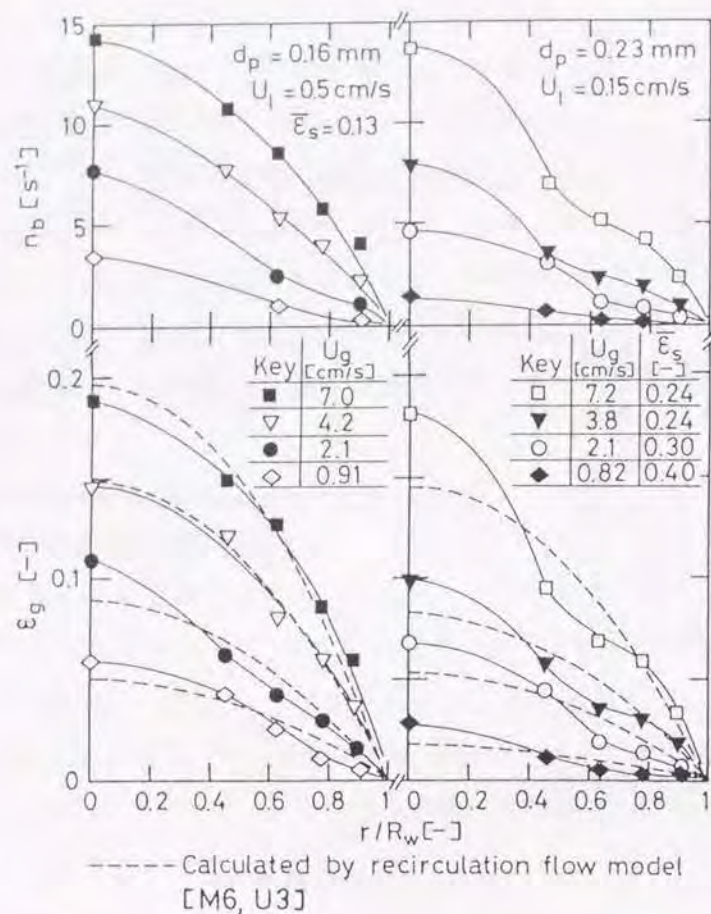


Fig. 3-3 Radial distributions of gas holdup and bubble frequency in a slurry bubble column.

ータと比較した。気泡塔の $\bar{\epsilon}_g$ に対するAkitaら[A2]の相関式及びスラリー気泡塔の不均一気泡流域の $\bar{\epsilon}_g$ に対するKoideら[K21]の相関式(Table 1-2参照)を用いて推定した $\bar{\epsilon}_g$ の値は、対応する操作条件下の本実験値とよく一致している。しかし、小島ら[K22]のガラス球-水系スラリー気泡塔の $\bar{\epsilon}_g$ のデータは高 U_g 域で本実験値よりも大きい値を示している。これは、彼らの研究ではガス分散器に多孔質板が使用されていること、及び $\bar{\epsilon}_s$ が非常に小さいことなどによる影響のためと思われる。加藤ら[K4]のガラス球-亜硫酸ソーダ水溶液系スラリー気泡塔の $\bar{\epsilon}_g$ は、本実験値と比較して非常に大きい。これは、電解質による気泡合抑制効果のためである。しかし、電解質系においても、 $\bar{\epsilon}_g$ は $\bar{\epsilon}_s$ の増大によって減少しており、この現象は本実験結果の場合と一致している。

Fig. 3-5に、 $\bar{\epsilon}_g$ に対する液粘度 μ_l の影響を示す。気泡塔における $\bar{\epsilon}_g$ は、 μ_l の増大によって若干減少した。スラリー気泡塔における $\bar{\epsilon}_g$ は、 $\bar{\epsilon}_s \leq 0.13$ では μ_l の影響をほとんど受けないが、 $\bar{\epsilon}_s = 0.2$ では μ_l の増大により減少した。さらに、Koideら[K21]が提出したスラリー気泡塔の

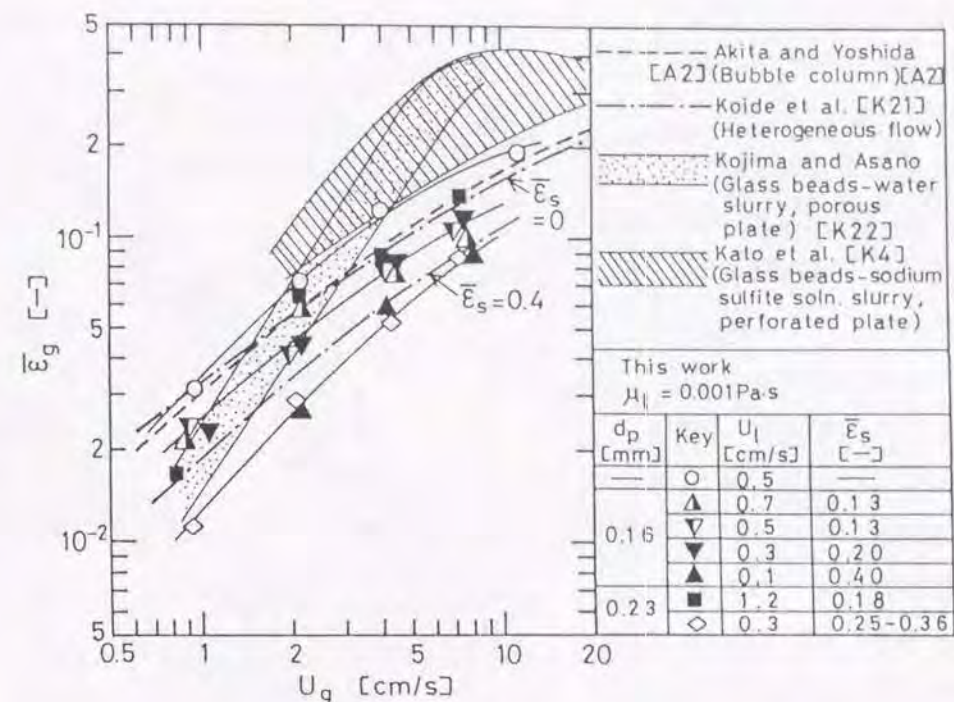


Fig. 3-4 Effects of $\bar{\epsilon}_s$ and d_p on $\bar{\epsilon}_g$ in a slurry bubble column.

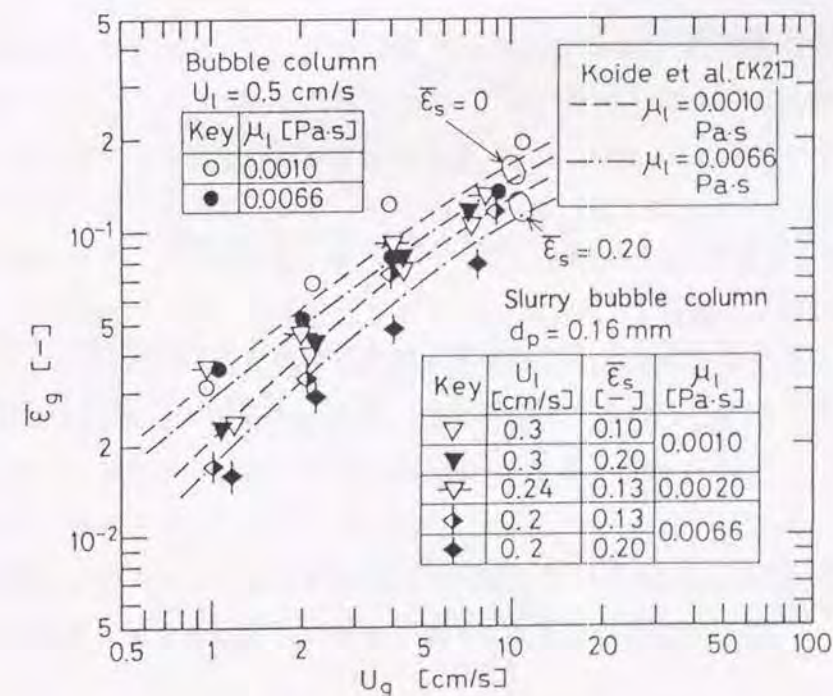


Fig. 3-5 Effect of μ_l on $\bar{\epsilon}_g$ in a slurry bubble column.

不均一気泡流動域における $\bar{\epsilon}_g$ の相関式による推定値は、本実験値とはほぼ一致した。

Fig. 3-6に、本実験で得られた $\bar{\epsilon}_g$ を、Koideら[K21]の気泡塔及びスラリー気泡塔の不均一気泡流動域に対する $\bar{\epsilon}_g$ の相関式から推定した値と比較して示した。この図より、本実験値は気泡塔及び低 $\bar{\epsilon}_s$ 域のスラリー気泡塔の場合に、Koideら[K21]の値よりもやや大きくなったが、 $d_p \leq 0.46$ mm 及び $\bar{\epsilon}_s \leq 0.4$ の条件下では、彼らの式によって良好に相関された。Koideら[K21]の式による $\bar{\epsilon}_g$ の推定値の本実験値に対する相対標準偏差は約28%であった。

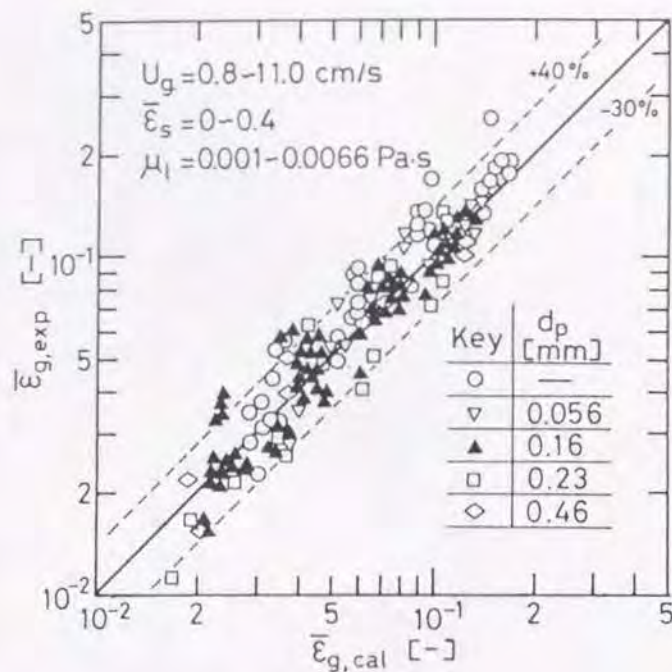


Fig. 3-6 Comparison of $\bar{\epsilon}_g$ values estimated by the equation of Koide et al. [K21] with those observed.

3. 2. 2 気泡長さ L_b 及び気泡上昇速度 U_b の分布

(a) 気泡長さ L_b の分布

Fig. 3-7に、気泡塔及びスラリー気泡塔における気泡長さ L_b の積算分布 F_1 を示す。また、対応する操作条件における \bar{n}_b も同図に示す。一般に、 F_1 は次式で表される対数正規分布で近似できた。

$$F_1 = \frac{100}{\sqrt{2\pi} \sigma_1} \int_{-\infty}^{\ln L_b} \exp\left\{-\frac{(\ln L_b - \ln L_m)^2}{2\sigma_1^2}\right\} d(\ln L_b) \quad (3-4)$$

対数正規分布則を適用して得られた F_1 のメディアン値(50%値) L_m 、及び対数標準偏差 σ_1 をそれぞれ図中に示す。

気泡塔では、 $U_g \leq 2.2$ cm/sで L_b のほとんどが5 mm以下であり、 L_m 、 σ_1 共に小さい。即

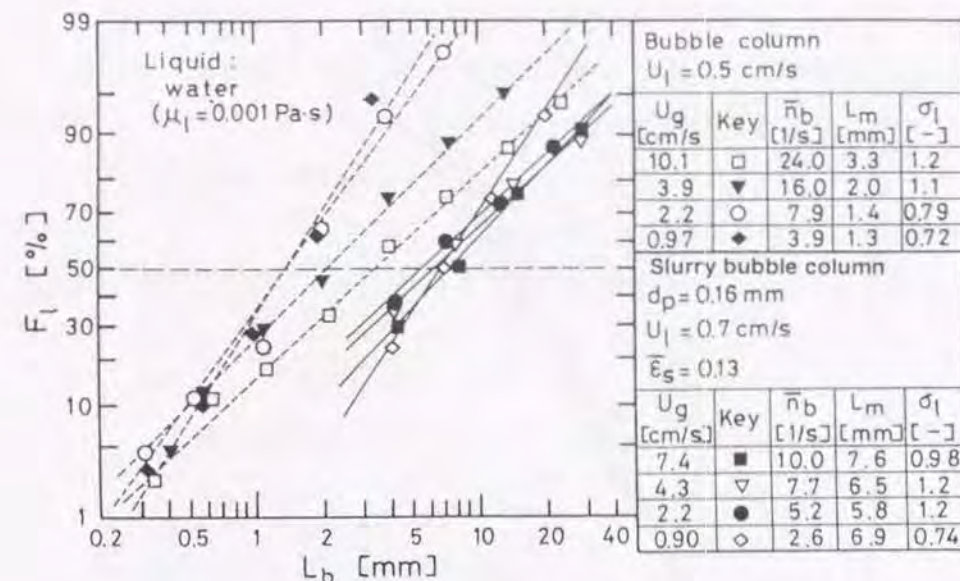


Fig. 3-7 Cumulative bubble length distribution in a bubble column and a slurry bubble column.

ち気泡流動状態は均一気泡流を示す。しかし、 $U_g \geq 3.9$ cm/s では、長さ10 mm以上の大気泡が発生するようになり、 L_m 、 σ_1 共に U_g の増大によって増大する。即ち、気泡流動状態は不均一気泡流へ変化している。この流動状態が変化する U_g 域は、Deckwerら[D7]が示した流動様式図(Fig. 1-5参照)とはほぼ一致している。一方、 \bar{n}_b の値は U_g にはほぼ比例して増大している。

$\bar{\epsilon}_s = 0.13$ の高濃度スラリー気泡塔においては、 $U_g = 1$ cm/s程度の低 U_g 域で長さ数10 mmの大気泡が観測され、流動状態は不均一気泡流を呈している。これより高濃度スラリー気泡塔に対しては、Deckwerら[D7]のスラリー気泡塔の流動様式図(Fig. 1-5)は適用できないことがわかる。また U_g の増大により F_1 分布はやや大気泡径側へ移行するが、 $U_g \geq 2.2$ cm/s では L_m 、 σ_1 共にほとんど変化しない。気泡塔の不均一気泡流動域の F_1 分布と比較すると、 σ_1 はほぼ同じ値であるが、 L_m は2~3倍大きい。一方、 \bar{n}_b の値は U_g の増大と共に増大するが、その増加率は気泡塔の場合と比較して小さい。これはスラリー気泡塔においては、気泡の合一が進行した結果、気泡の総数が気泡塔の場合と比較して著しく減少したことを示している。

(b) 気泡上昇速度 U_b の分布

Fig. 3-8に、気泡塔及びスラリー気泡塔の U_b の積算分布 F_v を、Fig. 3-7の F_1 と同一の操作条件に対して示す。 F_v は次式で示される正規分布によって表された。

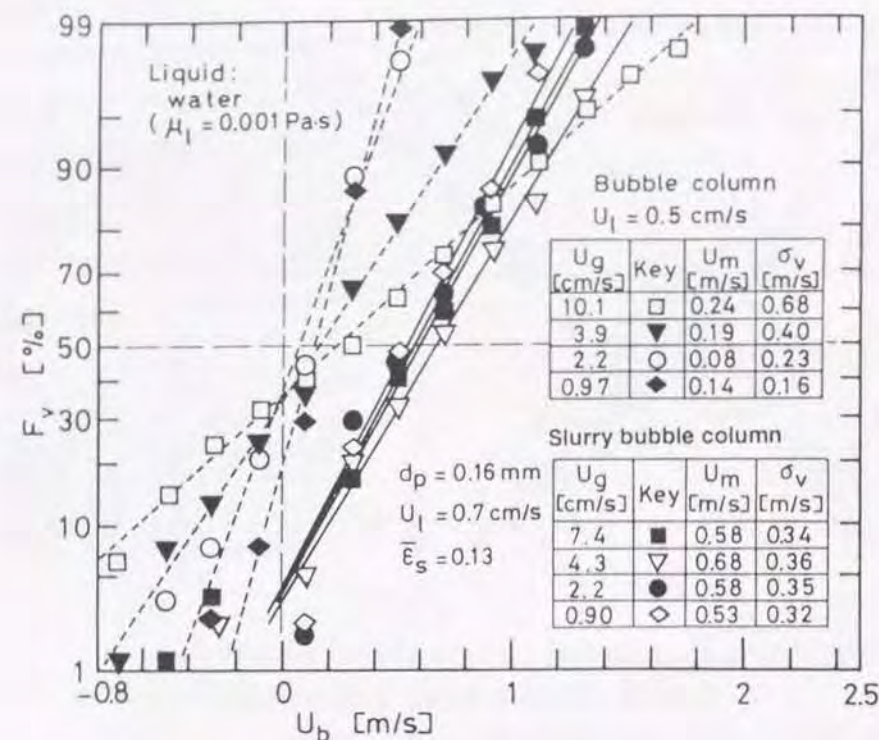


Fig. 3-8 Cumulative bubble velocity distribution in a bubble column and a slurry bubble column.

$$F_v = \frac{100}{\sqrt{2\pi} \sigma_v} \int_{-\infty}^{U_b} \exp\left\{-\frac{(U_b - U_m)^2}{2\sigma_v^2}\right\} d(U_b) \quad (3-5)$$

正規分布則を適用して得られた F_v のメディアン値 U_m 、及び標準偏差 σ_v を同図中に示した。

気泡塔における F_v は、Fig. 3-7に示した F_l の挙動と対応して、 $U_g=2\sim 4\text{ cm/s}$ を境界として大きく変化する。まず、低 U_g 域の均一気泡流域では、ほとんどの気泡の U_b が $-0.4\sim 0.6\text{ m/s}$ の範囲にある。一方、高 U_g 域では、 U_g の増大に伴い U_b の分布は U_b 軸上の正負両方向へ広がり、 σ_v は大きく増大するが U_m はほとんど変化しない。

高濃度スラリー気泡塔の F_v は、 U_g が増大してもほとんど変化しない。即ち気泡の約95%が $U_b=0\sim 1.4\text{ m/s}$ の範囲にあり、しかも下降する気泡の割合は気泡塔の場合と比較して小さい。 U_m 、 σ_v を気泡塔の不均一気泡流域におけるそれらと比較すると、 U_m は約3倍と非常に大きい、 σ_v は逆に小さく高 U_g 域で約1/2になる。

3. 2. 3 気泡群の挙動

Figs. 3-7, 3-8から、高濃度スラリー気泡塔の気泡群の大きさや、速度の分布形態には、気泡塔の場合と比較して、低 U_g 域で著しい相違があることがわかった。ところが、これらの図からは、気泡群を構成する個々の気泡における L_b 対 U_b の関係がどうなっているかを明らかにすることは出来ない。そこで一例として、 $U_g=2\text{ cm/s}$ の条件において、気泡塔及びスラリー気泡塔で得られた個々の気泡データにおける L_b 対 U_b の関係(L_b , U_b)をFig. 3-9に点綴した。

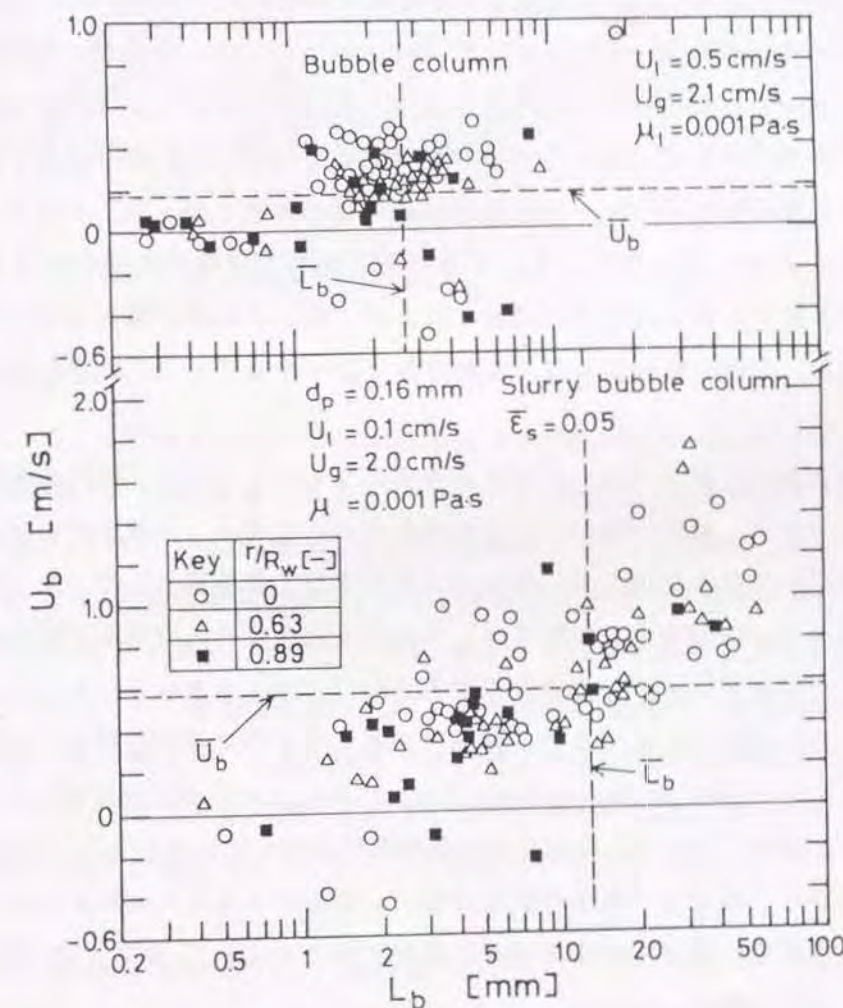


Fig. 3-9 Relationship between L_b and U_b for individual bubbles in a bubble column and a slurry bubble column.

気泡塔においては、個々の気泡を示す(L_b , U_b)の点の大部分が、全気泡に対する算術平均値を示す点(\bar{L}_b , \bar{U}_b)の近傍の比較的狭い領域に密集して分布している。これは、明らかに均一気泡流動における気泡群の特徴を示している。

一方スラリー気泡塔においては、(L_b , U_b)は(\bar{L}_b , \bar{U}_b)近傍に集中せず、(\bar{L}_b , \bar{U}_b)を含んだ右上がりの帯状の領域に分散して存在する。これは、明らかに不均一気泡流動における気泡群の特徴を示している。しかも塔中心部に高速で上昇する大気泡が多数現れ、 L_b は小さくても気泡塔の場合と比較して大きい U_b をもつ気泡も存在する。更に、下降する気泡は比較的少ない。これらの結果は、スラリー気泡塔においては、気泡の合一が促進された結果、大気泡の割合が増大し、小気泡は大気泡の上昇運動に伴って上昇することを示唆している。

スラリー中における気泡の合一を支配する因子に、スラリーのレオロジック的性質が考えられる。例えば、粒子層中を上昇する単一気泡の速度が、気泡径の減少と共に、液体中を上昇する場合と比較して、極めて小さくなることが報告されている[D3]。これは粒子層と気液界面との相互作用により、気泡界面のスラリーの移動抵抗が非常に大きくなったことによるが、その相互作用には、粒子の摩擦抵抗と気泡上昇に伴う気泡上面の粒子層の圧密化が考えられている[D3]。即ち、気泡上面では液は速やかに排除されるが、粒子層はその慣性力のため液よりもやや後れて排除される。そのため気泡上面に高濃度粒子層が形成され、これが気泡上昇に対する抵抗となる。

このような性質を持つスラリー中に小気泡群を発生させたとしても、小気泡単独では速やかに上昇することが出来ず、後から続いてくる気泡と衝突、合体し、大気泡が形成される。こうして出来た大気泡は小気泡と比較して、浮力による大きな上昇推進力を持って上昇する。このとき気泡上面のスラリーは速やかに排除され、気泡周囲にスラリーの循環が生じる。このような気泡の合一現象は、気体がノズルを出た直後で最も活発に起こると考えられる。一方、合一により大きく成長した気泡は、上昇する間に周囲との相互作用のため気泡界面に乱れの波動が生じ、更にそれが拡大しTaylor instability[C3,M6,T1]、大気泡の分裂が生じる。従って層内では気泡の合一と分裂の間には、ほぼ動的平衡関係が成立していると考えられる。

これまでの結果から、スラリー粒子は気泡の合一を促進させることがわかった。そこで、スラリーの性質が気泡特性に及ぼす影響を詳細に検討するために、 F_l 及び F_v に及ぼす粒子濃度や液粘度の影響について検討した。

Fig.3-10に $d_p=0.16\text{mm}$, $U_g=2\text{cm/s}$, $\mu_l=1\text{mPa}\cdot\text{s}$ の条件における F_l 、 F_v に及ぼす $\bar{\epsilon}_s$ の影響を示す。 $\bar{\epsilon}_s$ の増大と共に F_l は大気泡径側へ、 F_v は高上昇速度側へ移行する。特に、 $\bar{\epsilon}_s=0.02\sim0.03$ の極めて低粒子濃度で F_l 及び F_v の変化が著しい。 $\bar{\epsilon}_s=0.02\sim0.03$ で気泡合一が促進されるに伴い、塔内に活発な循環流動が生じ、気泡流動様式は均一気泡流から不均一気泡流へ変化する。

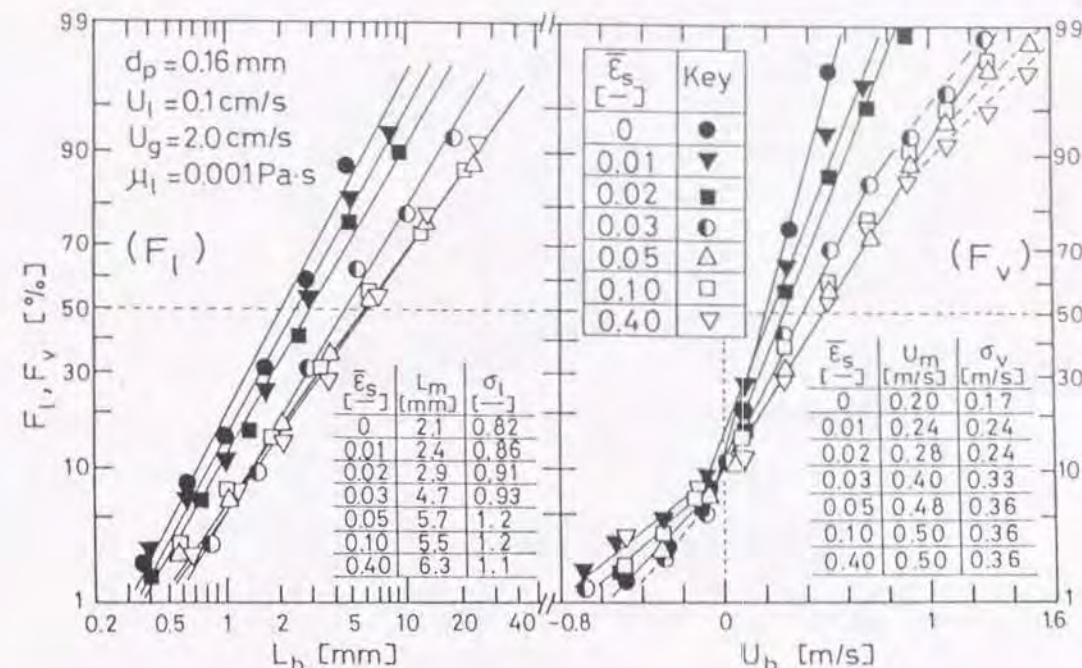


Fig.3-10 Effect of $\bar{\epsilon}_s$ on F_l and F_v at $U_g=2\text{ cm/s}$ and $\mu_l=1\text{ mPa}\cdot\text{s}$.

Fig.3-11に、 $U_g=2\text{ cm/s}$ において、気泡塔及び $d_p=0.16\text{mm}$ 、 $\bar{\epsilon}_s=0.13$ の高濃度スラリー気泡塔における F_l 及び F_v の特性値である σ_l 、 L_m 、 σ_v 及び U_m に及ぼす液粘度の影響を示す。気泡塔における F_l 及び F_v の特性値は、 $\mu_l < 2\text{ mPa}\cdot\text{s}$ では μ_l の増大と共に大きく増大するが、 $\mu_l > 2\text{ mPa}\cdot\text{s}$ ではあまり増大しない。一方、高濃度スラリー気泡塔における F_l 及び F_v の特性値は、 μ_l の増大と共に徐々に減少し、高 μ_l 域では気泡塔におけるそれらに漸近する。即ち、高粘度液を用いたスラリー気泡塔においては、固体粒子の気泡合一促進効果は小さく、その気泡群の分布形態は同じ液を用いた気泡塔のそれと類似する。これは、高粘度液を用いたスラリーでは、粒子の慣性力よりも液の粘性力の方が、気泡界面の流動に対して支配的となり、粒子と気泡界面の相互作用が減少したことによると考えられる。

3. 2. 4 体面積平均径 d_{vs} の挙動

気泡の形状を球と仮定すれば、電気探針法で得られた平均気泡長さ \bar{L}_b から体面積平均径 d_{vs} は次式によって得られる[U1]。

$$d_{vs} = 1.5 \bar{L}_b \quad (3-6)$$

この仮定の根拠として以下のことが挙げられる。通常大気泡が単独で上昇する場合、気泡の形

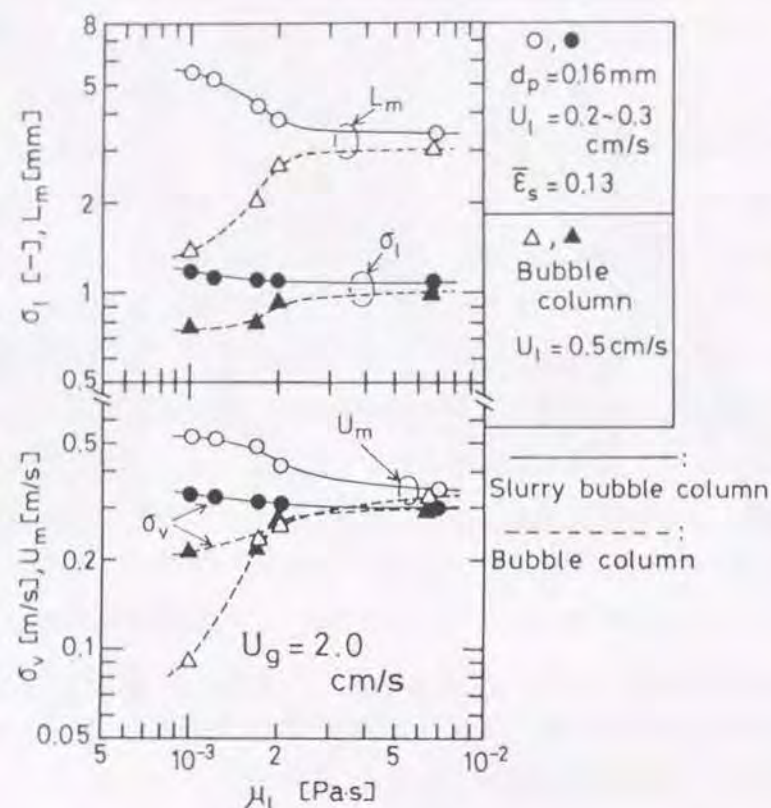


Fig.3-11 Effect of μ_l on parameters representing the distributions of bubble properties.

状はキノコ笠状になる。しかし、スラリー気泡塔内では、活発な循環乱流流動が生じ、気泡群間の激しい合一と分裂が起こっていると考えられるので、個々の気泡が単一気泡の場合のようなキノコ笠状の気泡形状のままで上昇するとは考えられない。しかも、活発な循環乱流流動が生じている場合には、気泡周りの流体との相互作用のため球形に近い形状を保つようになると考えられる。

Fig.3-12に気泡塔操作において得た d_{vs} の結果を示す。低 $\mu_l (=1\text{ mPa}\cdot\text{s})$ の液を用いた場合、 d_{vs} は、 U_g の増大に伴い流動様式が均一気泡流から不均一気泡流へ変化することと対応して急激に増大する。 μ_l の増大と共に d_{vs} は徐々に増大したが、 U_l を0.5~5cm/sの範囲で変化させても、 d_{vs} にはほとんど影響を及ぼさない。

次に、水系気泡塔における既往の結果[A3, K19, U4]をFig.3-12に示し、本実験値と比較した。Ueyamaら[U4]の d_{vs} は低 U_g 域でやや大きい、 d_{vs} の U_g に対する変化は本実験結果とほぼ

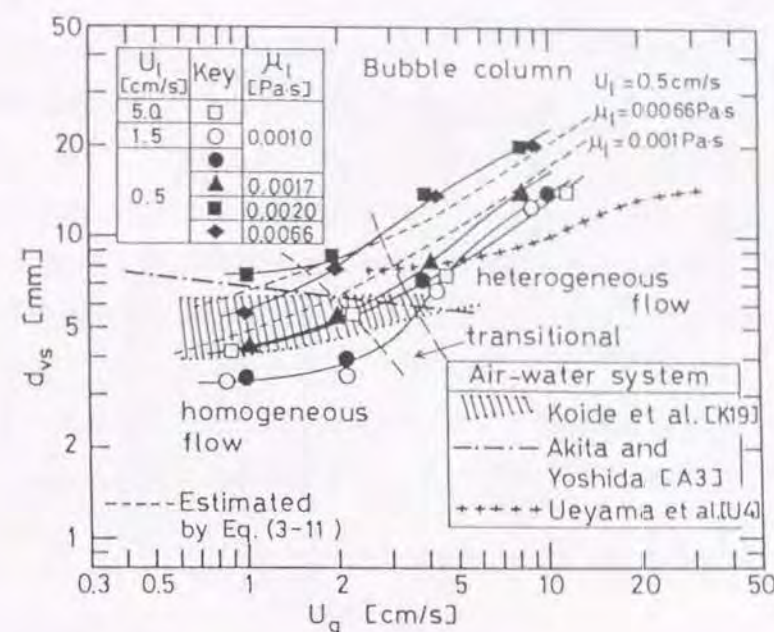


Fig.3-12 Volume surface mean bubble diameter in bubble columns.

同様であった。小出ら[K19]のデータも本実験値とほぼ等しい。一方、Akitaら[A3]の d_{vs} は低 U_g 域で本実験値よりも約2倍大きく、 U_g の増大と共に減少している。これは本実験で得た結果とは明らかに異なっている。この原因として、Akitaら[A3]はガス分散器に単孔ノズルを用いているため、低 U_g 域でも大気泡の発生が容易に起こること、および写真撮影法を用いているので高 U_g 域では塔中心部を通る大気泡を壁近傍の多数の微小気泡のために捉えることが出来なかったことが考えられる。

Figs.3-13, 3-14に、直径0.16および0.46mm ガラス球を用いたスラリー気泡塔の d_{vs} を示す。

0.16mmガラス球-水系スラリー気泡塔の d_{vs} は、 $\mu_l = 1\text{ mPa}\cdot\text{s}$ の場合、 $E_s \geq 0.1$ では、 E_s 及び U_g の影響をほとんど受けず、気泡塔の d_{vs} よりも著しく大きい。これは、Figs.3-7, 3-8及び3-10の説明で述べたように、高濃度スラリー気泡塔では、低 U_g 域で既に気泡の合一が激しく起こり、気泡群間の合一と分裂の間の動的平衡関係が成立していることが考えられる。一方、 μ_l の増大に対して、 $E_s = 0.13$ の場合には、 d_{vs} は低 U_g 域で減少するが、 $E_s = 0.20$ の場合には、 d_{vs} はほとんど変化しない。この様に、 μ_l を増大させることによって、気泡合一が促進される粒子濃度の領域が高濃度側に移行する原因として、Fig.3-11の説明で述べたように、液の粘性力の増大によって、粒子と気泡界面との相互作用による気泡界面流動抵抗が減少させられたこ

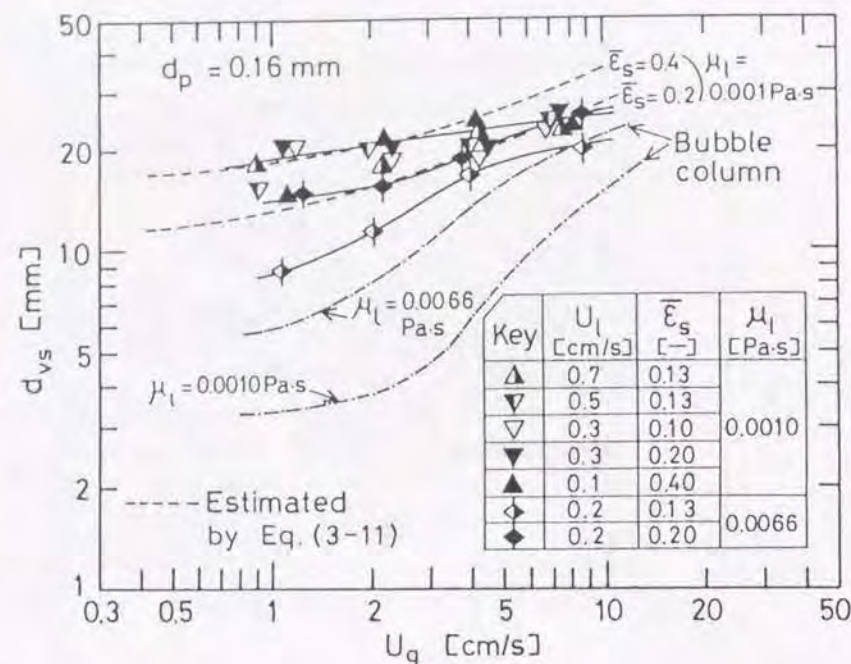


Fig.3-13 Volume-surface mean bubble diameter in a slurry bubble column containing 0.16 mm glass beads.

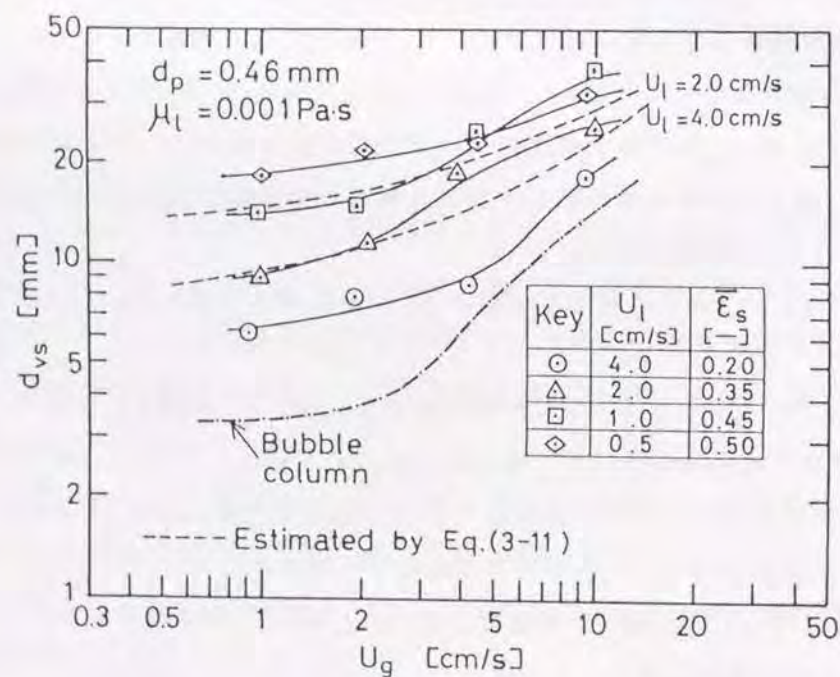


Fig.3-14 Volume-surface mean bubble diameter in a slurry bubble column (or in a three-phase fluidized bed) containing 0.46 mm glass beads.

とが考えられる。

0.46mmガラス球-水系スラリー気泡塔の d_{vs} は、図中の全操作域で $\bar{\epsilon}_s > 0.2$ と高粒子濃度であるにもかかわらず、 U_l の増大によって減少する。この U_l の増大による d_{vs} の減少効果は、低 U_g 域で顕著である。この原因は、 $d_p = 0.16\text{mm}$ のスラリー系操作と比較して、粒子の流動分散化のためには約1桁大きな液流速が必要であることと、層内の流動状態が3相流動層型に近くなり(第2章参照)、 U_l の増大と共に粒子層が膨張して活発に流動化するようになり、気泡前面に対する粒子層の抵抗が小さくなり、気泡は比較的小気泡のままの状態を粒子層中をスムーズに通過できるようになったためと考えられる。

Fig.3-15に本実験で得られた気泡塔及びスラリー気泡塔の全気泡データに対して、 d_{vs} 対 \bar{U}_b の関係を示す。 d_{vs} と \bar{U}_b の関係は、 d_p 、 $\bar{\epsilon}_s$ 及び μ_l の影響を受けず Davies-Taylor[D5]型の相関式Eq.(3-7)によって良好に表された。

$$\bar{U}_b = 1.3 \sqrt{g d_{vs}} \quad (3-7)$$

また図中にCliftら[C4]の水中を上昇する単一気泡の気泡径と上昇速度 U_{b0} の関係を示して本実験値と比較した。なお、Cliftら[C4]の式は高 d_{vs} 域で Davies-Taylor[D5]の式と一致する。Eq.(3-7)から計算される \bar{U}_b は、約 $d_{vs} \leq 5\text{mm}$ でCliftら[C4]の U_{b0} とはほぼ一致するが、 d_{vs}

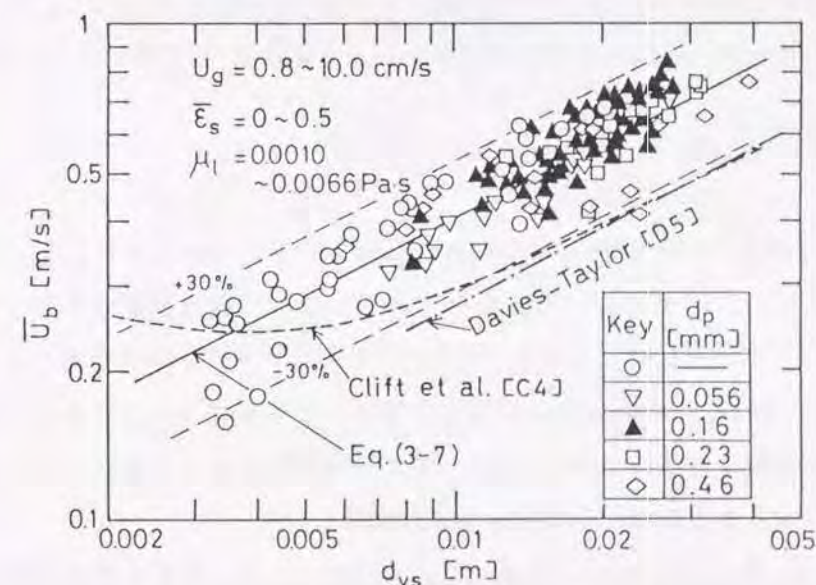


Fig.3-15 Relationship between \bar{U}_b and d_{vs} .

$\geq 10\text{mm}$ では、 \bar{U}_b は U_{b0} よりも約40%大きい。これはFig.3-9からもわかるように、大気泡が発生する領域では、小気泡は大気泡に同伴される形態をとり、小気泡単独の場合よりも大きな速度で上昇するようになるために、平均気泡上昇速度 \bar{U}_b も単一気泡の上昇速度より大きくなったと考えられる。

3. 2. 5 体面積平均径 d_{vs} の相関

Figs.3-12~3-14で示した結果から、 d_{vs} は U_g 、 U_l 、 $\bar{\epsilon}_s$ 、 d_p 、 μ_l 等の多くの操作因子の影響を受けていることがわかった。従って、これらの因子を直接用いて d_{vs} を相関することは非常に困難である。そこで、Eq.(3-7)の關係に着目し、まず \bar{U}_b を1次元の混相流モデルによって相関することを試みた。

Dartonら[D4]は、Wallis[W2]によって提出されたドリフト-フラックスモデルを気液固3相系に応用し、ドリフト-フラックス V_D を次式によって定義した(第2章、2.2.3参照)。

$$V_D \equiv U_g(1 - \bar{\epsilon}_g) - U_l \bar{\epsilon}_g(1 - \bar{\epsilon}_g)/\bar{\epsilon}_l \quad (3-8)$$

ここで、 $\bar{\epsilon}_l$ は $1 - \bar{\epsilon}_g - \bar{\epsilon}_s$ で与えられる平均液ホールドアップである。更に V_D は経験的に次式で表される。

$$V_D = \bar{\epsilon}_g U_{b0}(1 - \bar{\epsilon}_g)^N \quad (3-9)$$

ここで、 N はアジャスタブルパラメータである。ところで、Fig.3-15から \bar{U}_b は U_{b0} にほぼ比例することがわかったので、Eq.(3-9)中の U_{b0} を $k\bar{U}_b$ (k は定数)で置換できる。従って、

$$V_D = k \bar{\epsilon}_g \bar{U}_b(1 - \bar{\epsilon}_g)^N \quad (3-10)$$

を得る。これを本実験データに適用して検討した結果をFig.3-16に示す。 $k=1$ 、 $N=0$ の場合が最も良好に適合することがわかった。また、第2章では3相流動層の不均一気泡流動域におけるガスホールドアップを相関する際に、 \bar{U}_b として平均ドリフト速度を用いたが、本章においてスラリー気泡塔では \bar{U}_b に平均気泡上昇速度を用いることができた。これはスラリー気泡塔においては、3相流動層よりもいっそう気泡上昇速度が大きくなり、見かけ上ドリフト速度が気泡上昇速度に一致するようになったためと考えられる。

従って、 $k=1$ 、 $N=0$ とおいたEq.(3-10)とEq.(3-7)から、 d_{vs} を表す次式が得られる。

$$d_{vs} = 0.59(V_D/\bar{\epsilon}_g)^2/g \quad (3-11)$$

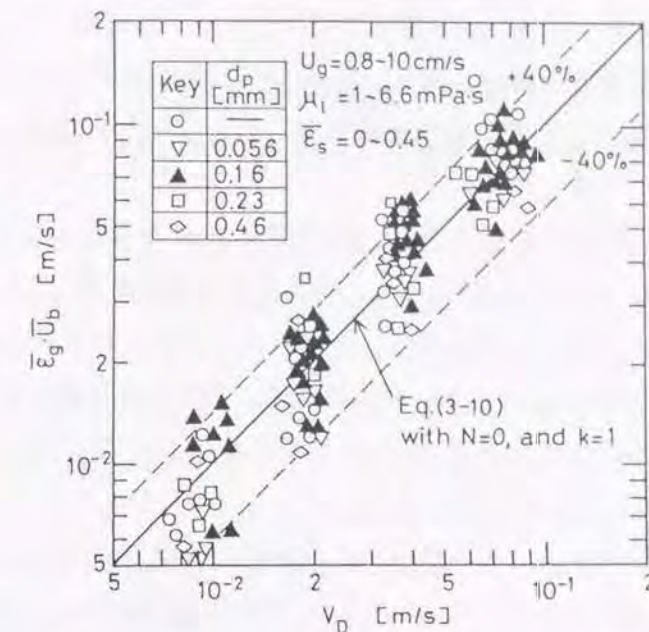


Fig.3-16 Correlation of \bar{U}_b based on the drift-flux model.

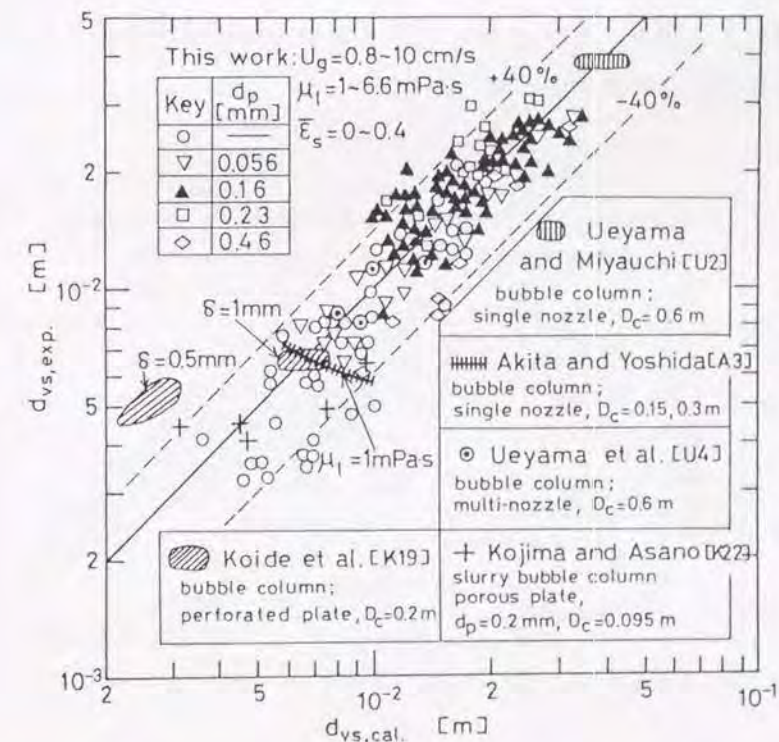


Fig.3-17 Comparison of the values of d_{vs} estimated with those observed.

Fig.3-17に、 d_{vs} のEq.(3-11)による計算値と実験値との比較を示す。ここで、 $\bar{\epsilon}_g$ にはKoideら[K21]の式による推定値を用いた。気泡塔及びスラリー気泡塔の d_{vs} はEq.(3-11)を用いて約30%の相対標準偏差で推定できた。更に、Figs.3-12~3-14に示した d_{vs} の実験値の代表例に対して、Eq.(3-11)による d_{vs} の推定値を破線で示した。これらの図から、 d_{vs} の推定値は実験値とよく一致していることがわかる。

またFig.3-17には、気泡塔及びスラリー気泡塔における既往の d_{vs} に関する実験データ[A3,K19,K22,U2,U4]と、Eq.(3-11)による d_{vs} の推定値の比較を示した。小出ら[K19]の気泡塔のデータは、ガス分散器に用いた多孔板の孔径が大きい場合には良好に推定されていることがわかる。Akitaら[A3]の気泡塔の d_{vs} は、条件の変化に対して推定値とは傾向的に異なった挙動を示したが、その推定誤差は比較的小さいものであった。図に示した他の d_{vs} のデータ[K22,U2,U4]は推定値とよく一致している。

気泡塔、スラリー気泡塔から3相流動層にわたる広い操作形態の下において、本実験データ及び、既往の実験データ[A3,L1]から、 d_{vs} 対 d_p の関係を求めFig.3-18に示した。ここで気泡塔操作は $d_p=0$ に相当すると考えればよい。各研究者のデータ間で $\bar{\epsilon}_s$ 、 U_g 等の操作条件の範囲が一致していないが、スラグ流が形成されるような高 U_g 域のデータを除けば、 d_{vs} の d_p に対する変化は上に凸の帯状の領域として示され、 d_p の減少と共に d_{vs} は気泡塔のそれに漸近することがわかった。更に、空気-水-ガラス球の3相系操作の場合には、 $d_p=0.2\text{mm}$ 付近で気泡径は最大となることがわかった。

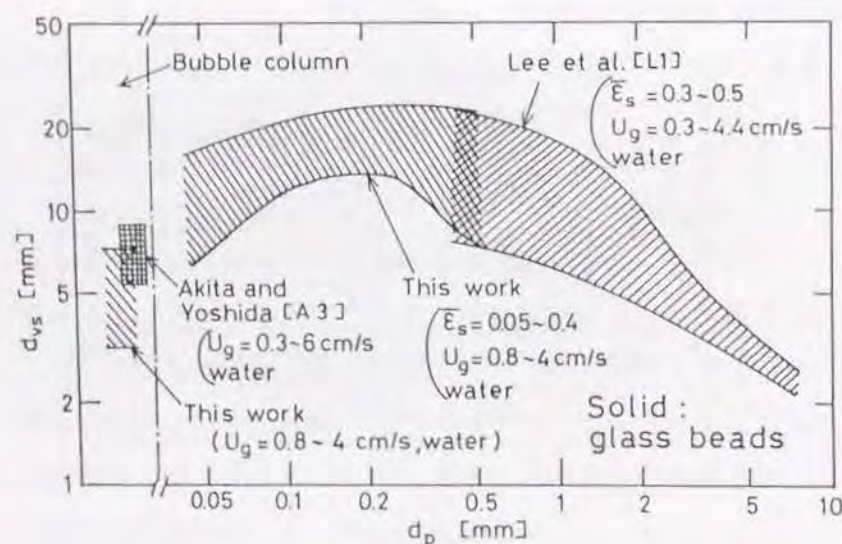


Fig.3-18 Effect of d_p on d_{vs} for a slurry bubble column and for a three-phase fluidized bed containing glass beads.

結 言

スラリー気泡塔及びスラリー気泡塔と3相流動層の境界領域に及ぶ広い操作範囲において、ガスホールドアップ及び気泡特性(気泡径と気泡上昇速度)を、電気探針法によって測定し、以下の知見を得た。

(1) 局所ガスホールドアップ ϵ_g の半径方向分布は、一般に、塔中心部で最大値を取り壁面でゼロとなる放物線型となり、循環流理論からの予測と一致した。しかし、高粒子濃度でスラリーの流動性が悪い場合、ガスが塔中心部を吹き抜ける現象が起きた。一方、断面平均ガスホールドアップ $\bar{\epsilon}_g$ はKoideら[K21]の不均一気泡流動域における相関式によって良好に相関された。

(2) 気泡径(探針法で得られた気泡長さ)の分布は対数正規分布則に従い、気泡上昇速度の分布は正規分布則に従った。スラリー気泡塔の気泡群の挙動を気泡塔の場合と比較すると、気泡径は大気泡径側に、気泡の速度は高上昇速度側にあることがわかった。このスラリー粒子の気泡合一促進効果は液粘度 μ_l の影響を受け、低 μ_l の場合には低 $\bar{\epsilon}_s$ でも顕著に発現したが、 μ_l の増大と共に徐々に減少した。

(3) 気泡を球と仮定して、探針法で得た平均気泡長さから得た体面積平均気泡径 d_{vs} と、平均気泡上昇速度 \bar{U}_b との関係は、Davies-Taylor型の相関式によって良好に表された。一方、 \bar{U}_b はドリフトフラックス V_D と $\bar{\epsilon}_g$ を用いて表すことが出来た。以上の2つの関係から、 d_{vs} を相関する式を得た。

第 2 編

気液固 3 相流動層における物質移動

緒言

3相流動層やスラリー気泡塔の気液間物質移動特性は、これらの操作を気相成分が関与する反応器あるいはバイオリアクターなどに使用する場合、必須の装置特性である。この気液間物質移動特性に関する研究は、第1章で述べたように、いわゆる狭義の3相流動層やスラリー気泡塔操作に対しては活発に行われてきた。このうちスラリー気泡塔に対して行われてきた研究は、液固回分式操作を対象としたものがほとんどであり、固相の完全懸濁条件を満たすための臨界粒子濃度(Fig.1-8参照)以下の比較的低粒子濃度(スラリー中の平均容積分率で、最大0.1程度)での操作に限られている。

しかし、石炭の液化プロセスなどの固体を大量に処理する操作に有望と考えられる高濃度スラリー気泡塔(粒子濃度が臨界濃度よりも大きいスラリー気泡塔操作;第2章参照)における気液間物質移動を調べた研究報告はない。

そこで本研究では、高濃度スラリー気泡塔の気液間物質移動現象の解明を目的とした。まず、高濃度スラリー気泡塔における液相容量係数 $k_L a$ の測定を行い、これに対する気、液、固各相の操作条件の影響を調べ、それらの条件を用いて $k_L a$ の相関式を作成した。次に、第3章で得た気泡特性データ(平均ガスホールドアップと体面積平均径)を用いて、 $k_L a$ を、液側物質移動係数 k_L と気液間界面積 a とに分離し、これらに対する操作条件の影響や流動状態との関係などを調べ、 k_L と a をこれらに影響する因子を用いて相関した。

4.1 実験装置および方法

実験装置の概略をFig.4-1に示す。気、液の供給システムは、液供給ラインに放散塔⑦が加えられている以外、第2、3章のそれと基本的に同一である。即ち、固相回分、液相流通式とし、液の上昇流により粒子を流動化させ、塔内の粒子濃度が臨界粒子濃度以上の高い値を取るようにすることによって、高濃度スラリー気泡塔を形成させた。塔本体は内径0.15m、塔高1.05および1.55mの透明アクリル樹脂製円筒である。気相には空気を、液相には水道水およびグリセリン水溶液(濃度、約5及び20vol%)を用い、液温は貯槽中で 293.2 ± 0.2 Kに調節した。スラリー粒子には分級した平均粒径0.16mm及び0.23mmのガラス球を用いた。使用した液の物性及び粒子の特性は、それぞれTables 3-1及び3-2に示してある。ここで塔内に投入した粒子量、液空塔速度及びガス空塔速度等の操作条件の組合せを、第3章で気泡特性を調べるときに操作した値の組合せにできるだけ近くなるように設定した。これによって、物質移動特性を解

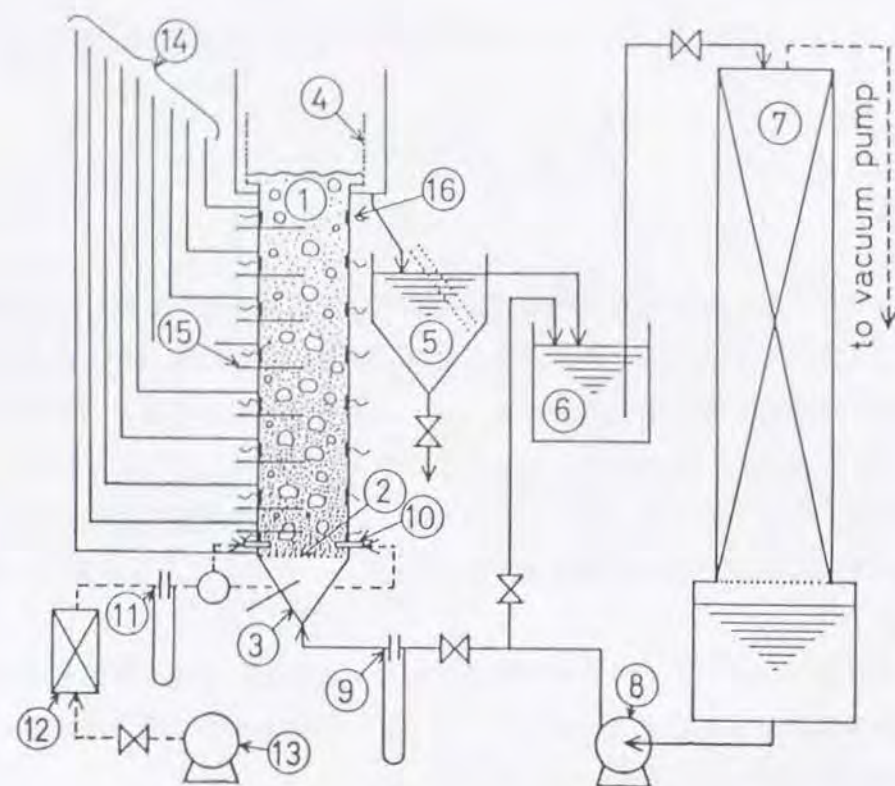


Fig. 4-1 Schematic diagram of experimental apparatus.

1: Column, 2: Bed support, 3: Calming section, 4: Filter, 5: Separator, 6: Liquid reservoir, 7: Stripper, 8: Pump, 9: Orifice meter (liquid), 10: Gas distributor, 11: Orifice meter (gas), 12: Saturator, 13: Compressor, 14: Manometer, 15: Sampling tube, 16: Electroconductivity probe

析するために必要となる気液固各相のホールドアップ及び気泡特性のデータを、第3章の結果から引用して用いることができる。

貯槽の液を減圧した放散塔へ送って溶存酸素を脱気させた後塔へ供給し、塔本体中で空気と接触させ、酸素の液への吸収を行わせた。この塔内における溶存酸素濃度を種々の軸方向距離で測定し、その軸方向分布を求めた。

層内の液相中の酸素濃度分布に対し、軸方向混合拡散モデルを適用して解析し、モデルからの解析解として得られた濃度分布が実測分布と合致するように、モデルパラメータである $k_1 a$ を算出した。

4. 2 実験結果および考察

4. 2. 1 液相容量係数 $k_1 a$ の挙動と相関

Fig. 4-2に塔内の液相溶存酸素濃度を無次元化した値 $(C^* - C)/(C^* - C_0)$ の軸方向分布の例を示す。塔内溶存酸素濃度は、塔本体内の液相の逆混合のため、塔入口直後で急激に上昇し、流入溶存酸素濃度に対して不連続な値を示した。但し、図中の無次元量 $(C^* - C)/(C^* - C_0)$ は、塔本体入口近傍で急激な減少を示す。この不連続性が塔本体中の液相の混合拡散の効果によることは明らかである。図中に実線で示した混合拡散モデルによる解は、実験値をよく説明しており、このことはモデルの妥当性を示している。

スラリー気泡塔の $k_1 a$ の挙動を調べる基準として、液空塔速度 U_l の小さい気泡塔において $k_1 a$ を測定し、それらを既往の相関式 [A2, H7, K21, S5] による推算値と共に Fig. 4-3 に示す。気泡塔における $k_1 a$ は U_l の影響をほとんど受けず、 U_g の増大と共に増大する。本実験値は Akita ら [A2] による値より 20-50% 大きい。また Hikita ら [H7] による値と比較すると、本実験値は低 U_g 域で一致するが高 U_g 域ではやや大きい。しかし、本実験値は Shah ら [S5] 及び Koide ら [K21] による不均一気泡流動域での値とよく一致している。このような $k_1 a$ の挙動の差異は、Koide ら [K21] によれば、Shah ら [S5] 及

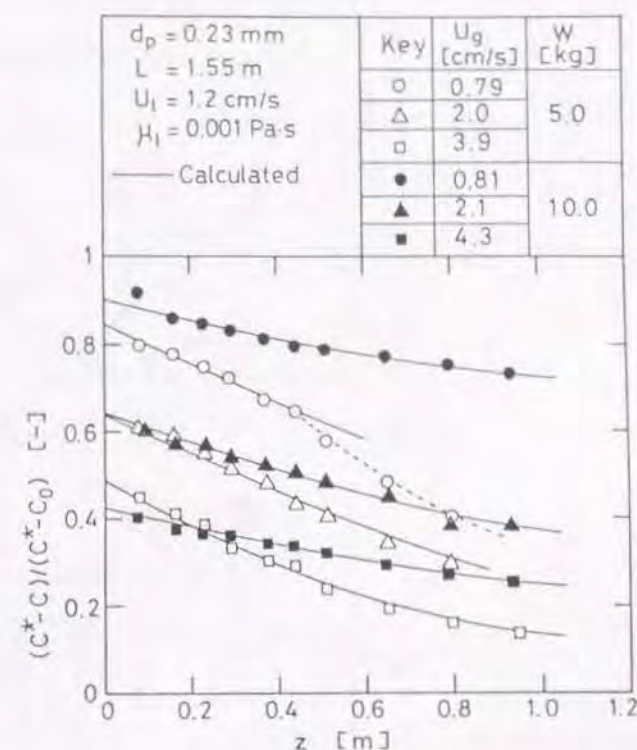


Fig. 4-2 Axial distributions of dimensionless quantity $(C^* - C)/(C^* - C_0)$ in a slurry bubble column.

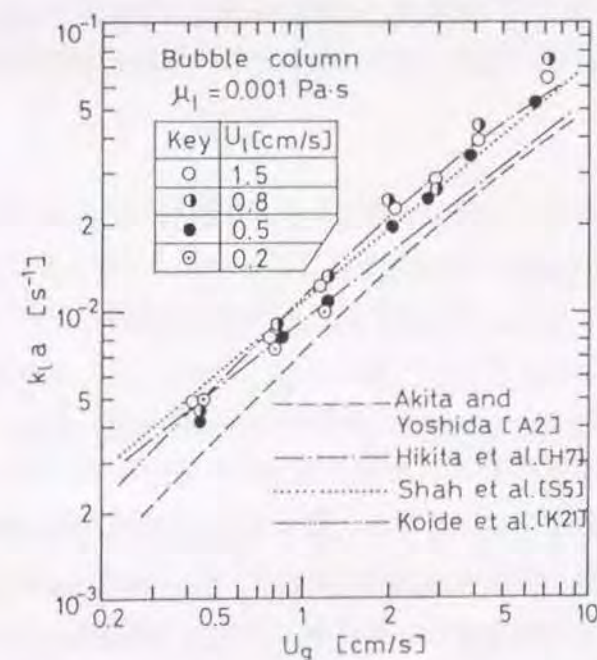


Fig. 4-3 Volumetric liquid-phase mass transfer coefficient in a bubble column.

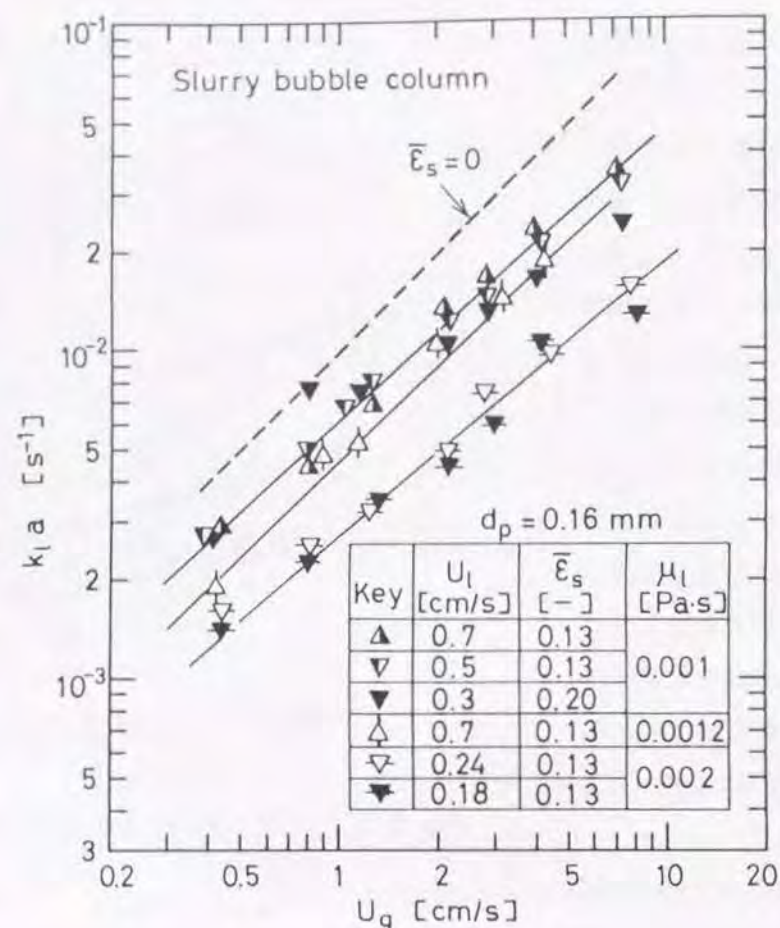


Fig.4-4 Volumetric liquid-phase mass transfer coefficient in a slurry bubble column containing 0.16 mm glass beads.

びKoideら[K21]においては、本実験の場合と同様に多孔構造のガス分散器が使用されているが、Akitaら[A2]及びHikitaら[H7]においては、単孔のガス分散器が使用されていることによるとされている。即ち、発生する気泡の形状が分散器の種類によって異なるため、 $k_L a$ の値に違いが生じたと考えられる。

Figs. 4-4, 4-5にスラリー気泡塔における $k_L a$ の実験結果を示す。また比較のために、気泡塔における $k_L a$ の値を図中に示す。スラリー気泡塔の $k_L a$ は、平均粒子ホールドアップ $\bar{\epsilon}_s$ の増大と共に減少する。特に低 U_g 域で塔下部に極めて高い $\bar{\epsilon}_s$ の高濃度粒子層が形成される流動状態の場合(Fig.4-5)において、 $k_L a$ は著しく小さい。また液粘度 μ_l の増大によっても $k_L a$ は著しく減少する。この様にスラリー気泡塔の $k_L a$ が $\bar{\epsilon}_s$ や μ_l によって大きな影響を受けたのは、第3章で述べたスラリー気泡塔における気泡群の特性が、 $\bar{\epsilon}_s$ や μ_l によって影響を受けたことと関係しているものと思われる。一方、 U_l が $k_L a$ に及ぼす影響は、 U_l の操作範囲が狭いために確認できなかった。

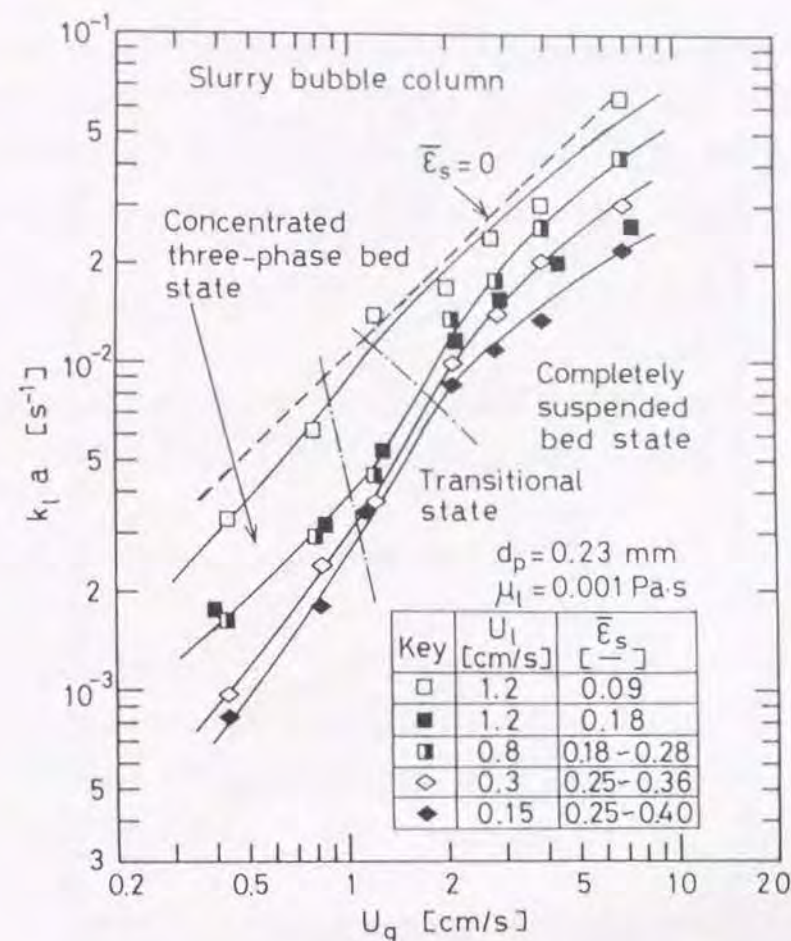


Fig.4-5 Volumetric liquid-phase mass transfer coefficient in a slurry bubble column containing 0.23 mm glass beads.

次に、 $\bar{\epsilon}_s$ の $k_L a$ に及ぼす影響を既往の報告からの結果とも比較しながら調べるために、 $k_L a$ 対スラリー中の平均粒子濃度 $\bar{\phi}_s$ の関係をFig.4-6に示す。ここで、 $\bar{\phi}_s \equiv \bar{\epsilon}_s / (1 - \bar{\epsilon}_g)$ と定義される。この図から、 $k_L a$ は $\bar{\phi}_s$ の増大と共に減少することがわかる。Nguyen-Tienら[N6]の結果は、本実験の場合と比較して $k_L a$ の $\bar{\phi}_s$ に対する依存性がやや小さく、彼らの得た $k_L a$ の値が本実験値よりも大きいことを示している。一方、Koideら[K21]の結果では、 $\bar{\phi}_s$ の増大による $k_L a$ の減少が本実験の結果よりも大きい。

$\bar{\phi}_s$ の $k_L a$ に及ぼす影響が研究者によって一致しなかった原因として、操作された U_l の大きさの違いが考えられる。まず、Nguyen-Tienら[N6]の場合には、 U_l の値が本実験の場合と比較して約1桁大きくかつスラリー粒子の終末沈降速度よりも大きいため、スラリー輸送層操作(第1章、1.1.1参照)となっている。このような条件下では、スラリーの流動性が極めて良好で、しかも多孔構造のガス分散器が使用されているので、気泡は比較的小気泡のままで上昇すると考えられる。そのため本実験系の場合よりも気液界面積 a の減少が顕著には起きず、 $k_L a$ の $\bar{\phi}_s$

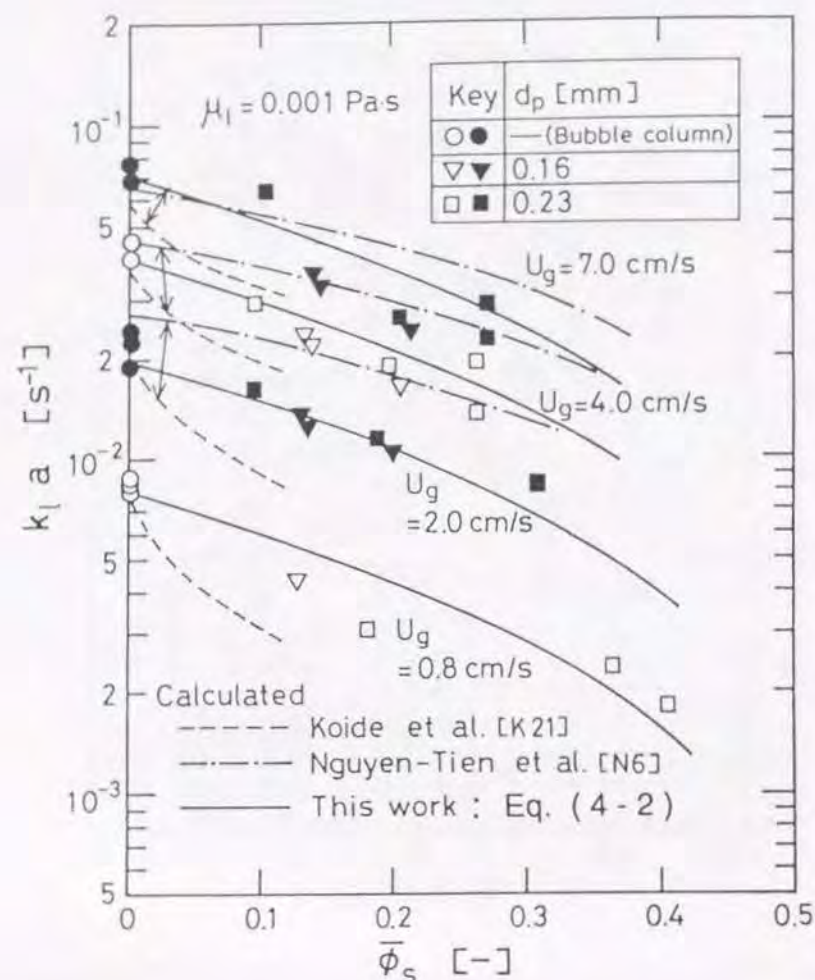


Fig.4-6 Effect of $\bar{\phi}_s$ on $k_1 a$.

依存性を低下させたと思われる。次に、Koideら[K21]の場合には液回分式懸濁気泡塔であるために、 $\bar{\phi}_s$ の増大と共にスラリーの流動性が低下し、 $k_1 a$ の減少がいつそう顕著に現れていると考えられる。一方、本実験の場合には粒子の終末沈降速度よりも小さい U_l で操作しているために、液の持つ運動量は小さい。従って $\bar{\phi}_s$ （あるいは $\bar{\phi}_s$ ）の増大によって気泡径の増大が生じ（第3章参照）、それによって、たとえ液側物質移動係数 k_l が増大したとしても、それ以上の a の減少が生じ、結果として $\bar{\phi}_s$ の増大による $k_1 a$ の減少が徐々に起こったと考えられる。

このようにスラリー気泡塔の $k_1 a$ の挙動の本質は、 $k_1 a$ を構成する k_l と a 、すなわち層内の流動状態に支配される a と気液の界面現象に支配される k_l の両者が、気液の操作条件や μ_l や ϕ_s 等のスラリーの性質を決定する因子の影響をそれぞれ別々に受けていると考えることができる。従って、 $k_1 a$ の挙動を解明するためには $k_1 a$ を k_l と a とに分離し、それぞれを別々に検討する必要がある。

しかし、スラリー気泡塔の装置設計においては、 $k_1 a$ の値が重要なパラメータであるから、 $k_1 a$ を操作条件から推定出来るようにしておくことが必要である。そこで、 $\bar{\phi}_s$ 及び μ_l の増大による $k_1 a$ の減少が、スラリーの見かけの粘度 μ_{sl} の増大に起因すると考えて、 μ_{sl} を用いて $k_1 a$ の相関を試みた。 μ_{sl} はNikodemovaら[N7]による次式から与えられると仮定する。

$$\mu_{sl} = \mu_l / (1 - \bar{\phi}_s / \phi_m) \quad (4-1)$$

ここで、 ϕ_m は堆積状態にある粒子層の粒子濃度であり、本実験の場合 $\phi_m=0.60$ であった。この μ_{sl} を用いて、スラリー気泡塔及び水系気泡塔における $k_1 a$ を相関し、次の実験式を得た。

$$k_1 a = 3.09 \times 10^{-7} \{ (1 - \bar{\phi}_s / 0.60) / \mu_l \}^{1.50} U_g \quad (4-2)$$

但し、 $k_1 a$ [s $^{-1}$]、 μ_l [Pa \cdot s]、 U_g [cm/s]である。Eq.(4-2)からの計算値と実験値との比較をFig.4-7に示す。 $0.8 \leq U_g \leq 8.0$ 、 $0.001 \leq \mu_l \leq 0.002$ 、 $0 \leq \bar{\phi}_s \leq 0.4$ の操作条件下における本実験結果に対するEq.(4-2)による推定値の相対標準偏差は21%であった。なお、Fig.4-6中の実線は、Eq.(4-2)による計算値であり実験値をよく説明している。

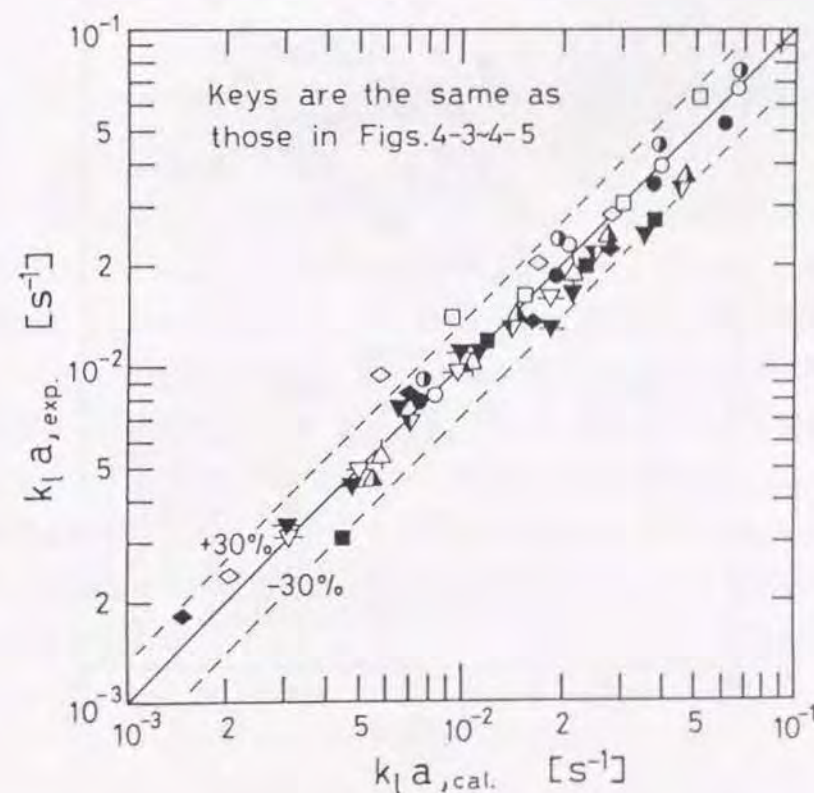


Fig.4-7 Comparison of $k_1 a$ values estimated by Eq.(4-2) with those observed.

4. 2. 2 気液界面積 a の挙動と相関

a の値は、平均ガスホールドアップ $\bar{\epsilon}_g$ 及び体面積平均径 d_{vs} から、次式によって算出できる。

$$a = 6 \bar{\epsilon}_g / d_{vs} \quad (4-3)$$

Figs. 4-8, 4-9 に、第3章で得た $\bar{\epsilon}_g$ 及び d_{vs} の実験値から、Eq. (4-3) を用いて求めた a を $\bar{\epsilon}_g$ に対してプロットした。また比較のために、Akita ら [A3] の気泡塔における a 対 $\bar{\epsilon}_g$ の関係を図中に示す。

気泡塔における a の本実験値は、 $\bar{\epsilon}_g$ の増大に対して、 $\bar{\epsilon}_g = 0.1$ 近傍で最大値を取り、これ以上の $\bar{\epsilon}_g$ では逆に減少する。これを Akita ら [A3] の値と比較すると、本実験値の方は a が最大値をとるまでの $\bar{\epsilon}_g$ 域では約2倍大きい、高 $\bar{\epsilon}_g$ 域では逆に小さくなる。この $\bar{\epsilon}_g$ の増大による a の減少は、 U_g が増大するにつれて、気泡流動様式が均一気泡流から不均一気泡流へ変化した (Fig. 3-12 参照) ことに対応している。更に気泡塔の a は μ_l の増大と共に減少する。

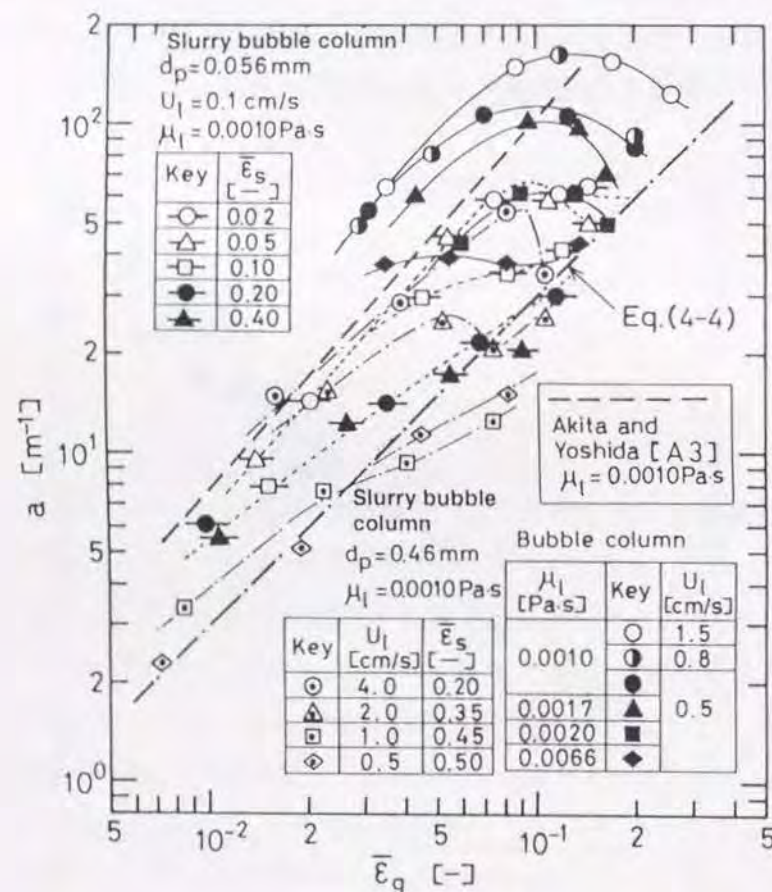


Fig. 4-8 Variation of a with $\bar{\epsilon}_g$ for a bubble column and a slurry bubble column.

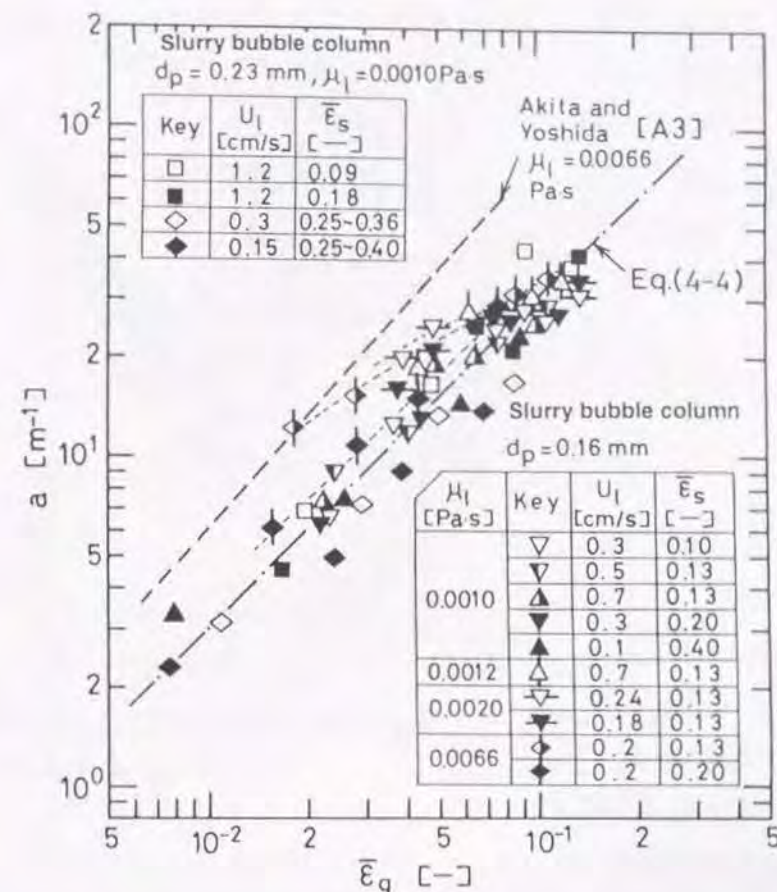


Fig. 4-9 Variation of a with $\bar{\epsilon}_g$ for a slurry bubble column.

一方、スラリー気泡塔における a は $\bar{\epsilon}_g$ の増大と共に増大し、 $\bar{\epsilon}_s$ の増大と共に減少する。 d_p 0.46 mm の場合には $\bar{\epsilon}_s$ が 0.2 以上と高濃度であるが、 U_l の増大によって a は増大する。 μ_l の影響を見ると (Fig. 4-9、 $d_p = 0.16$ mm)、 $\bar{\epsilon}_s \leq 0.13$ の条件では μ_l の増大と共に a はやや増大する。このような μ_l や $\bar{\epsilon}_s$ が a に及ぼす影響は、第3章で述べた μ_l や $\bar{\epsilon}_s$ の気泡群の挙動に対する影響の検討結果から次のように解釈される。即ち、 $\bar{\epsilon}_s$ の増大は気泡群の合一を促進し、 d_{vs} の増大と $\bar{\epsilon}_g$ の減少を引き起こすので、その結果 a の大きな減少を生じさせる。しかし、 μ_l の増大は気泡群の合一を妨げる作用をするので $\bar{\epsilon}_s$ があまり大きくない範囲での a の増大をもたらす。

さらにスラリー気泡塔の a の挙動を全体的に見ると、 $\bar{\epsilon}_s$ が十分に大きい場合、 a は近似的に次式で表されることがわかる。

$$a = 300 \bar{\epsilon}_g \quad (4-4)$$

ただし、 $a [m^{-1}]$ である。この関係は、気泡塔及び低濃度スラリー気泡塔においても、高 $\bar{\epsilon}_g$ 域で成立するようになる。

ところで、第3章において気泡塔及びスラリー気泡塔における $\bar{\epsilon}_g$ はKoideら [K21]の式で相関されること、及び d_{vs} はドリフト・フラックス V_D を用いた次式によって相関されることを示した。

$$d_{vs} = 0.59 (V_D / \bar{\epsilon}_g)^2 / g \quad (4-5)$$

そこで、これらの式を用いて $\bar{\epsilon}_g$ 及び d_{vs} の推定を行い、次にこれらの推定値を Eq.(4-3)に代入し a の値を求め、これを本実験値と比較した。その結果を Fig. 4-10に示す。均一気泡流域(気泡塔の低 U_g 域がこれに相当する)を除き、 a の本実験値は $\pm 40\%$ の誤差範囲内では推定できることがわかった。

次に、種々のスラリーを用いた気泡塔における a 対 $\bar{\epsilon}_g$ の関係に関する既往のデータ [C1, G2, G3, K4, K22, Q1, S4]を Fig. 4-11に示し、本実験結果と比較検討した。ここに示した全てにおいて、スラリー気泡塔の a は $\bar{\epsilon}_g$ とほぼ比例関係にあることがわかる。ところで液に亜硫酸ソーダ水溶液を使用した場合で $\bar{\epsilon}_g$ が小さい場合の a [K4]は、水系スラリー気泡塔の a [C1, K22, 本実験値]と比較して非常に大きい。これは電解質イオンによる気泡合一抑制効果による。しかし、CMC(カルボキシメチルセルロース)のような極微小粒子を含むいわゆる擬均一系スラリーからなる気泡塔 [S4, G2, G3]の a は、亜硫酸ソーダのような電解質が混入していてもスラリーの粘度の増大と共に減少し、Eq.(4-4)の関係に漸近する。

この様に、これまでに調べられてきた種々のスラリー気泡塔においても、気泡の合一が最も促進された状態においては、Eq.(4-4)の関係が近似的に成立すると思われる。このこととEq.(4-3)の関係と合わせてみると、 d_{vs} の上限はほぼ20mmと言うことになる。これは、Miyachiら [M6]が推論しているように、発達した循環乱流流動状態下では気液間のスリップ速度には上限があり、強力な乱流場が気泡の合一と分裂の間に動的な平衡関係を成立させていると考えれば説明できる。実際、第3章で示したように、 d_{vs} は高 $\bar{\epsilon}_g$ 域では U_g にほとんど依存せず、約20-25mmの値をとっている。

Fig. 4-11に示した種々の気泡塔とスラリー気泡塔の a を、Eqs.(4-3), (4-5)に従って推定した。

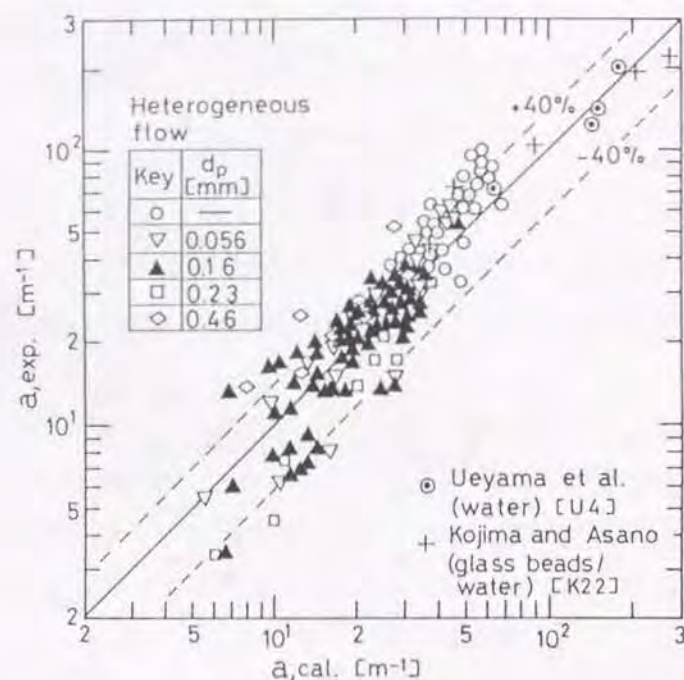


Fig. 4-10 Comparison of estimated and observed a values.

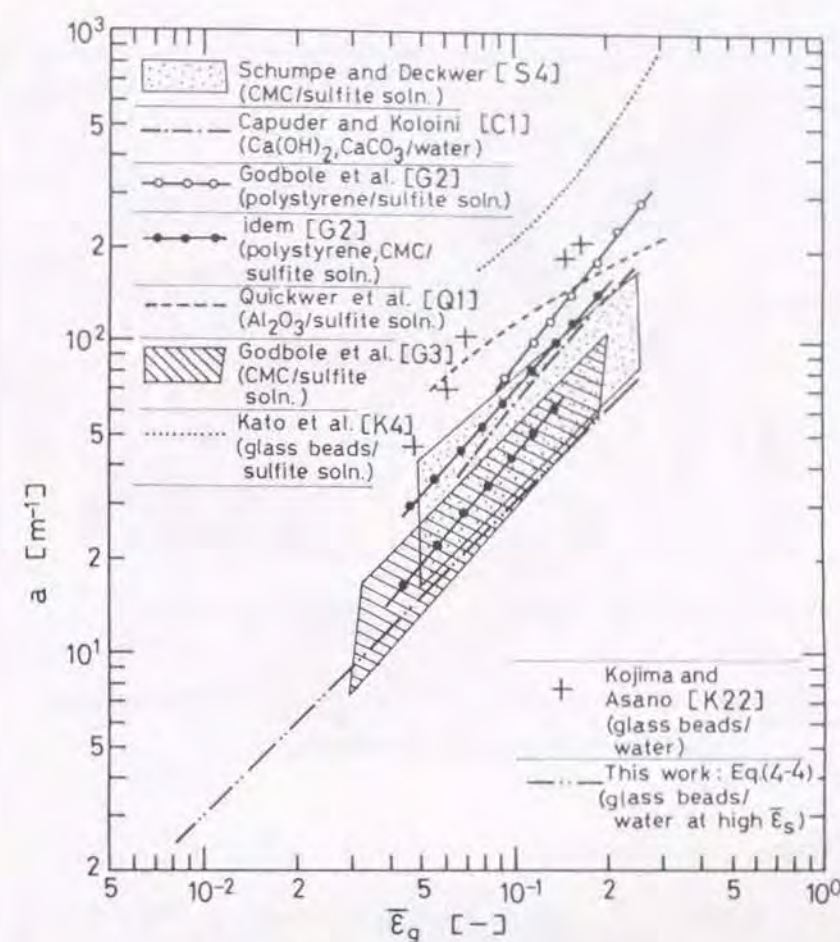


Fig. 4-11 Variation of a with $\bar{\epsilon}_g$ for various slurry bubble columns.

まず、ガス分散器が単孔ノズル或は多孔構造(個々の孔径が約1mm以上)であれば、電解質系、非電解質系を問わず、 $\bar{\epsilon}_g$ はKoideら [K21]の相関式によってほぼ $\pm 30\%$ の誤差範囲内で推定できた。一方、 d_{vs} は第3章、Fig. 3-17で示したように非電解質系においてはEq.(4-5)によってほぼ推定できることがわかっている。そこで、 $\bar{\epsilon}_g$ に対しては文献中の値をそのまま使い、 d_{vs} をEq.(4-5)を用いて推定し、これらの値をEq.(4-3)に代入し、 a を計算したところ、非電解質系 [K22, U4]においては推定値と実験値とは良好に一致した(これをFig. 4-10に示した)。

4. 2. 3 液側物質移動係数 k_l の挙動と相関

4. 2. 1で得た $k_l a$ の実験値を、4. 2. 2で求めた a の実験値で割って得た k_l を、同じ μ_l の条件で測定した d_{vs} (第3章参照)に対して、Fig. 4-12にプロットした。また、Akitaら [A3]、Nakaoら [N3]の気泡塔における k_l 対 d_{vs} の関係も比較のために示した。 k_l の本実験値は、 μ_l が同じ場合 d_{vs} にほぼ比例して増大し、一方、 d_{vs} が同じ場合については広範なデータ

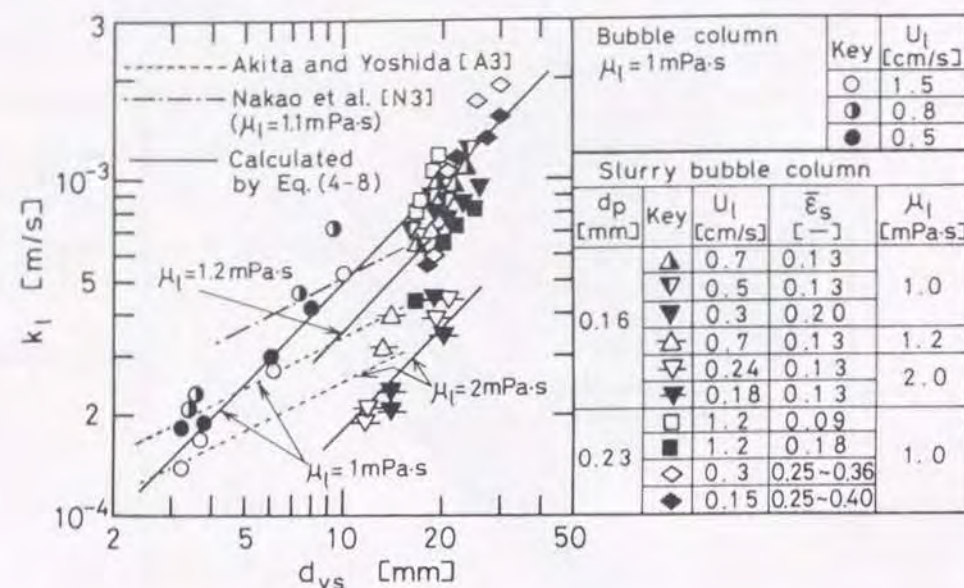


Fig. 4-12 Variation of k_L with d_{vs} for a bubble column and a slurry bubble column.

は得られていないが $k_L \propto \mu_L^{-1.1}$ の関係があることがわかった。しかし、 k_L に対する U_L 、 U_g 、 d_p 、 $\bar{\epsilon}_s$ 等の操作因子の直接的な影響は認められなかった。すなわち、 U_L 、 U_g 、 d_p 、 $\bar{\epsilon}_s$ 等の操作因子は d_{vs} を決定する因子として働くが、 k_L は d_{vs} や μ_L 等によって定まる気液界面の流動状態及び物理化学的性質によって支配されていることを示している。

そこで、気液界面における物質移動現象を支配すると考えられる因子による次元解析を行い、 k_L の相関を行ったところ、次式のような無次元式を得た。

$$Sh_L = c_1 Sc^{0.5} Ga^m Bo^n \quad (4-6)$$

ここで、 $Sh_L = k_L d_{vs} / D_L$ 、 $Sc = \mu_L / (\rho_L D_L)$ 、 $Ga = g d_{vs}^3 \rho_L^2 / \mu_L^2$ 、及び $Bo = g d_{vs}^2 \rho_L / \gamma_L$ である。また、 Sc の指数 0.5 は気液界面のような自由表面においては表面更新説が適用できると言う考えに依拠している。先に示した $k_L \propto d_{vs}$ および $k_L \propto \mu_L^{-1.1}$ の結果を考慮に入れて指数 m 、 n の値を求めたところ、 $m = 0.8$ 、 $n = -0.2$ を得た。この m および n の値の妥当性を確認するためのプロットを、Figs. 4-13、4-14 に行った。両図から、確かに

$$Sh_L / Sc^{0.5} \propto Ga^{0.8} Bo^{-0.2} \quad (4-7)$$

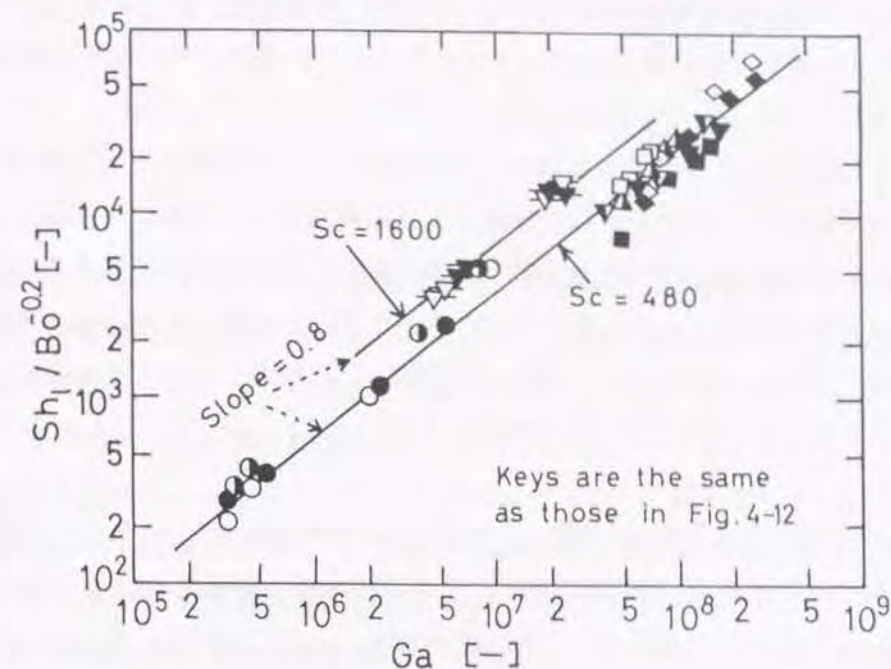


Fig. 4-13 $Sh_L / Bo^{-0.2}$ vs. Ga

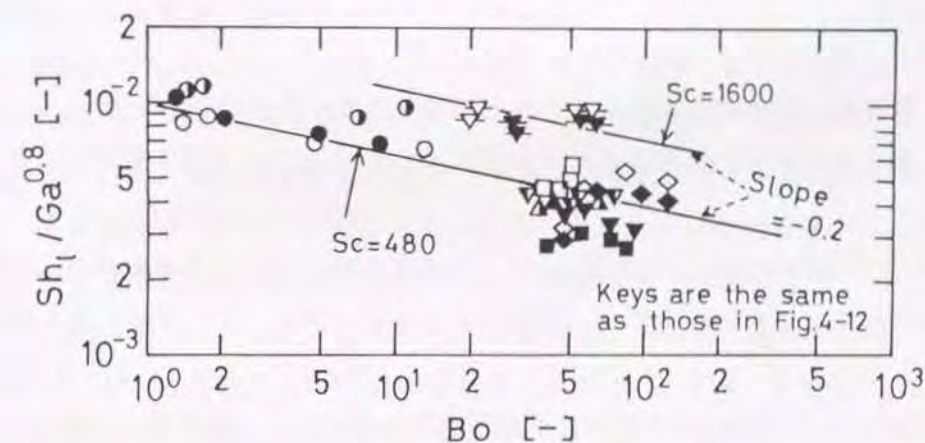


Fig. 4-14 $Sh_L / Ga^{0.8}$ vs. Bo

の関係が成立することが確認できた。

最後に Eq. (4-6) の係数を決め、気泡塔及びスラリー気泡塔における k_L の実験値は、次式によって良好に表された。

$$Sh_L = 4.5 \times 10^{-4} Sc^{0.5} Ga^{0.8} Bo^{-0.2} \quad (4-8)$$

Fig. 4-12 中の実線は Eq. (4-8) を用いて計算した値を示しており、実験値とよく一致している

ことがわかる。ところで、本研究で得られた k_l が d_{vs} に比例する と言う結果は、Akitaら[A3]やNakaoら[N3]が気泡塔で得た結果よりも大きい、気泡塔における k_l の実験値そのものはFig.4-12に示してあるように彼らの値に近い。

この様に、 k_l の d_{vs} 依存度が既往の関係よりも大きくなった原因として、高濃度スラリー気泡塔のような大気泡が多数発生し平均気泡径が大きい操作では、気泡は高速度で上昇するため(第3章参照)、気泡界面の乱れの強度が小気泡の場合と比較して非常に大きくなり、これが気液界面における物質移動を大きく増大させたことが考えられる。Nisikawaら[N9]も、気液系噴流層で大気泡が発生する操作においては、 k_l が d_{vs}^2 に比例することを報告している。これは本研究の場合よりも更に k_l の d_{vs} 依存度が大きい。

もし \bar{E}_g データが得られるならば、Eqs.(4-3),(4-5),(4-8)を用いて、 $k_l a = 6 k_l \bar{E}_g / d_{vs}$ としてスラリー気泡塔における $k_l a$ の推定が可能となる。例えば、本研究、Koideら[K21]やNguyen-Tienら[N6]の $k_l a$ は、この方法によって $U_g \leq 10 \text{ cm/s}$ 、 $\mu_l \leq 2 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ 、 $\bar{E}_g \leq 0.4$ の条件において、ほぼ±40%の誤差範囲内で推定が可能であった。

結 言

固相回分、気液相上昇流式の高濃度スラリー気泡塔における液相容量係数 $k_l a$ の測定を行い、更に、これを第3章で得た気泡特性データを用いて、 k_l と a とに分離し検討した結果、以下の結論を得た。

- (1) 高濃度スラリー気泡塔における $k_l a$ は、気泡塔におけるそれよりも小さく、粒子濃度の増大と共に減少した。これを、スラリーのみかけの粘度の増大による影響と考えて $k_l a$ の相関式を得た。
- (2) 気液界面積 a は、気泡塔操作に対して粒子濃度の増大と共に始め著しく減少したが、高粒子濃度域ではEq.(4-4)の関係に漸近して行った。
- (3) 液側物質移動係数 k_l は、層内の流動様式の変化と直接的には対応せず、体面積平均径 d_{vs} にはほぼ比例して増大し、 k_l は液粘度 μ_l の増大と共に減少した。これより k_l を相関する無次元式Eq.(4-8)を得た。
- (4) 以上のことから、 $k_l a$ の粒子濃度の増大による減少は、粒子濃度の増大によって d_{vs} の増大とガスホールドアップの減少が生じ、その結果、 a が著しく減少することに起因していることがわかった。

緒 言

3相流動層における粒子液間の物質移動速度は、固体触媒反応操作あるいは固液間の反応操作においては、必要不可欠な設計データである。粒子液間の物質移動係数 k_s に関する研究は、液固流動層操作に対しては、固体粒子の溶解法[D2,E8,M4,T2]、イオン交換反応を利用したもの[K26,R1]、電極法[R3]等の種々の測定法によって活発に行われてきた。

このうち本研究の示唆となったものとして、Ribaら[R3]の、電氣的に不活性な粒子を流動化させておき、その中に大きさが同じで、導線と結合された電氣的に活性な固定電極粒子を挿入し、その電極粒子表面の限界電流を測定して k_s を得たものがある。Ribaら[R3]は、固定電極からの k_s の操作条件に対する挙動を、彼らの研究グループがそれまでに行ってきた溶解法による流動化粒子からの k_s に関する多くのデータ[例えばD2,T2]と比較した。その結果、Ribaら[R3]は固定球からの k_s は流動化している粒子からの k_s と類似した挙動を取り、両者は共に同一の無次元相関式によって良好に相関できることを見出し、それによって、流動層中の固定球表面の k_s は、流動化している粒子表面の k_s と同等であると結論した。この結論は後に、3相流動層の k_s についても、やはり同じ研究グループによって確認されている[N8]。

Kikuchiら[K14]は、液固流動層の k_s に関する多くの既往のデータを再検討して、Ohashiら[O2]によって提出された、液流れ中に固定された単一球や液单相流充填層中の粒子に対する k_s の相関式によって、液固流動層の粒子からの k_s も相関できると報告した。ここで、Ohashiら[O2]の式では、Kolmogoroffの局所等方性乱流理論[H8]に基づいて導出される、液相中の単位質量当りのエネルギー散逸速度を用いた無次元項(以後、エネルギー散逸パラメータと呼ぶ)を用いて k_s を相関している。

一方、気液固系操作のうち懸濁気泡塔における k_s は斉藤ら[S1]、川村ら[K12]、Sanoら[S2]及びSängerら[S3]によって研究された。これらのうち、川村ら[K21]、Sanoら[S2]及びSängerら[S3]はKolmogoroffの局所等方性乱流理論に基づいたエネルギー散逸パラメータを用いて懸濁気泡塔の k_s を相関している。しかし、3相流動層における k_s に関する研究報告は極めて少なく[A5,N8,P2]、 k_s に及ぼす種々の操作因子の影響は断片的にしか明らかにされていない。しかもこれらの研究者はそれぞれ k_s を実験式の形で整理しているが、彼らの実験条件でしか適用できない。しかも類似した操作形態である充填層あるいは気液系操作などにおける k_s との相互の関連性については明らかにされていない。

そこで本研究においては、3相流動層の k_s の値が液固系あるいは気液系などの k_s の値とどの様な関係にあり、そして3相流動層の k_s の挙動を他の多相系接触装置の k_s も含めて統一的

に論じるために、これら種々の多相接触装置の k_s を測定し、それらの相関について検討を加えた。このように多様な操作形態での k_s の測定を可能にするために、Ribaら[R3]、Nikovら[N8]と同様に限界電流法によって k_s を測定した。すなわち、不活性球と直径のほぼ等しい電極粒子7~9個を種々の半径方向位置に固定し、個々の活性球から k_s の半径方向分布を測定し、また活性球全体から層平均の k_s を得る方法をとった。さらに、不活性球を流動化または固定化させるか、あるいは不活性球を全く入れないかの方法により種々の形態の多相系接触操作を可能とした。

5. 1 実験装置および方法

Fig.5-1に実験装置を示す。塔本体は内径82.9mm、厚さ3mm、長さ564mmのニッケル管から成る測定部と、その上部に内径84mmの透明アクリル樹脂製円筒から成る非測定部が連結されて構成されている。測定部の円筒内には粒子電極がニッケル管と絶縁されて固定されている。

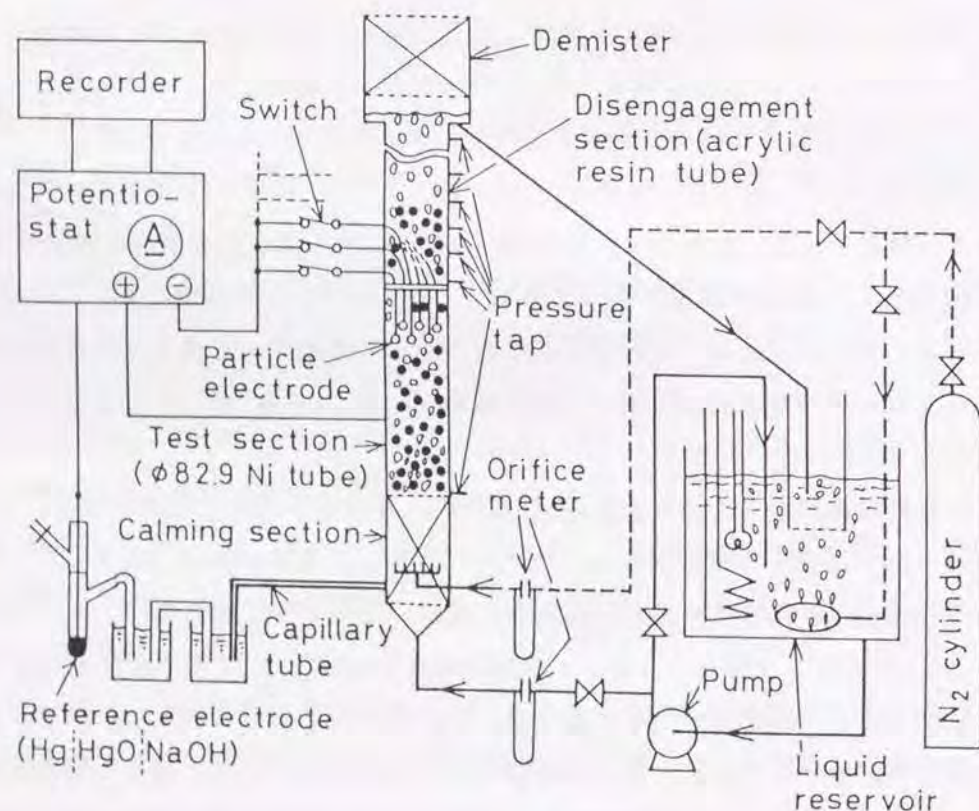


Fig.5-1 Schematic diagram of experimental apparatus.

粒子液間物質移動係数 k_s を測定するための粒子電極の詳細をFig.5-2に示す。ニッケルメッキした電極粒子は、外径1.8mmのステンレス鋼製保護管を通した導線と結合し、エポキシ樹脂で管先端部に管と絶縁させて固定した。これを図に示したように塔断面上で塔中心軸を通して直交する方向の半径位置 $r=0, 10, 20, 30$ 及び35mmに7~9個設置した。各電極粒子と測定回路はスイッチにより結線を切り替え、個々の粒子における k_s 及び全粒子をひとまとめにした平均の k_s のどちらも測定出来るようにした。電極粒子の直径は流動層や充填層操作において使用する不活性粒子とほぼ等しくした。不活性粒子にはガラス球(密度 2500kg/m^3)を使用し、大きさは直径3.1及び4.8mmである。一方、それに対応する電極粒子の直径はそれぞれ3.4及び5.0mmである。Fig.5-2に示した固定電極をFig.5-1に示すように、測定部ニッケル円筒の上部から下向きに挿入し固定した。

k_s の測定は粒子電極を陰極、ニッケル円筒を陽極とし、水酸化ナトリウムを支持電解質とするフェロシアンイオン-フェリシアンイオン酸化還元系の電極反応によった。

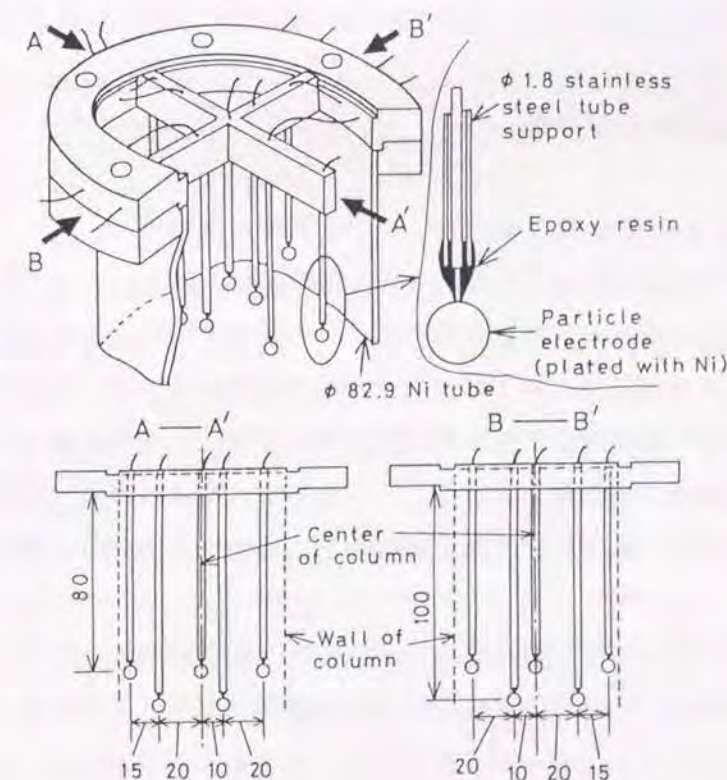
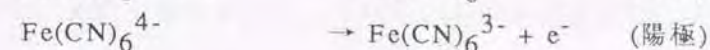
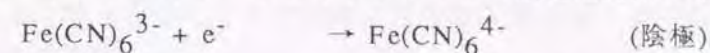


Fig.5-2 Assembly of fixed particle electrode.

電源にポテンシオスタット(北斗電工, HA-211)を用い、陰極-液間電位を限界電流が得られる値に設定した。 k_s は得られた限界電流 I より、次式によって求められる。

$$k_s = I / (n_e F A_s C_b) \quad (5-1)$$

ここで、 n_e は電極反応に参与するイオンの価数変化(本反応の場合、 $n_e=1$)、 F はファラデー定数、 A_s は電極表面積及び C_b は液本体中のフェリシアンイオン濃度である。以上述べた本研究で採用した電気化学的手法による物質移動係数測定の詳細はMizushima[M7]によった。

実験に使用した電解質水溶液の物性をTable 5-1に示す。液温は貯槽内に設置した冷却用コイルとヒーターを用いて 293.2 ± 0.2 Kに調節した。気体には本電解質水溶液系に対して不活性な窒素を使用した。気液固系操作における実験条件をTable 5-2に示す。ここで、液の流速範囲は流動化開始液速度よりも小さい充填層を形成する領域も含んでいる。

粒子層上面位置を物質移動係数測定部上端位置よりも常に塔径の2~3倍高くなるように粒子量を調節した。流動層内の気、液、固各相の平均ホールドアップを層内静圧勾配、粒子量及び流動層高を用いて第2章の方法(静圧勾配法)を用いて求めた。

一方、気液並流充填層操作における気液のホールドアップは本実験システムでは測定が困難であったので、それらの値は既往の相関式[A1,S10]を用いて推定した。

5. 2 実験結果および考察

5. 2. 1 粒子液間物質移動係数 $k_{s,r}$ の半径方向分布

Fig.5-3に個々の電極で測定された粒子液間物質移動係数 $k_{s,r}$ の半径方向分布を示す。気液2相流における $k_{s,r}$ は半径方向距離に依存せず一様な値を持つ分布を示す。3相流動層における $k_{s,r}$ の値は、低ガス流速域では半径方向に一様な分布を示すが、高ガス流速域では壁近傍における値が塔中央部における値よりも約20%小さい。また、充填層領域においても、局所の半径位置での $k_{s,r}$ の値はやや変動しているが、一定の傾向を持った $k_{s,r}$ の半径方向分布は存在しない。従って、気液系、液固系及び気液固系の $k_{s,r}$ の半径方向分布は壁近傍を除きほぼ一様であると言える。

ところで、気液2相流及び3相流動層においては、第3章で述べたように、 ϵ_g の半径方向分布は塔中心で最大値をとり壁面でゼロとなる放物線型となり、それに伴って液相の活発な循環流動が生じる。ところが $k_{s,r}$ の半径方向分布が一様であったことから、粒子表面での物質移動に参与しているのは、 ϵ_g の半径方向分布を生じさせるような塔全体でのマクロな乱流構造ではなく、粒子表面近傍でのミクロなスケールの乱れであり、これが半径方向にほぼ一様になっていると推定される(局所等方性乱流場の成立)。

Table 5-1 Properties of electrolyte solution used

Concentration of $K_3Fe(CN)_6$	1×10^{-3} mol/l*
Concentration of $K_4Fe(CN)_6$	1×10^{-3} mol/l*
Concentration of NaOH	0.2 mol/l
Viscosity	1.05×10^{-3} Pa·s
Density	1006 kg/m ³
Diffusivity of $Fe(CN)_6^{3-}$	6.97×10^{-10} m ² /s**
Schmidt number	1500
Temperature	293.2 ± 0.2 K

* Representative values

** Estimated by the equation of Eisenberg et al.^{E1)}

Table 5-2 Experimental conditions for fluidization systems

d_p [mm]	Mesh size [mesh]	U_l [cm/s]	U_g [cm/s]	n [-]	U_i [cm/s]
3.1	6-7	0.5-17.0	0-30.0	2.39	26.0
4.8	3.5-5	0.5-17.0	0-30.0	2.39	34.2

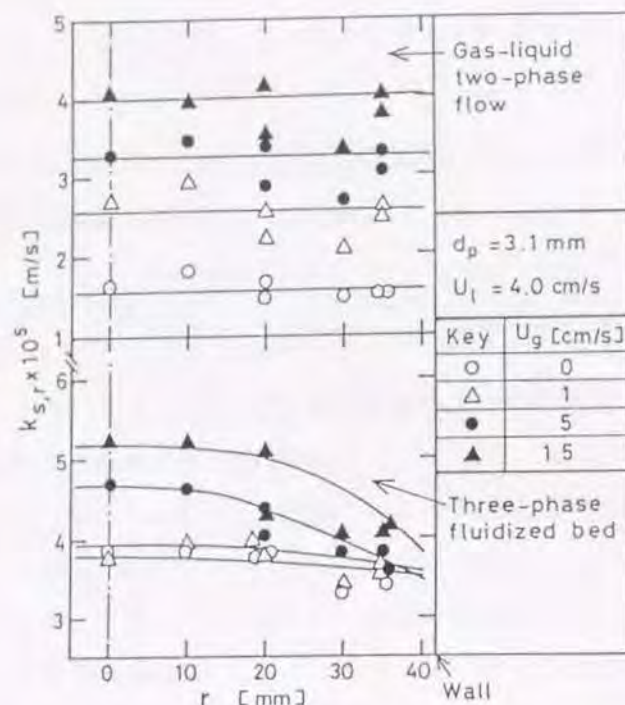


Fig. 5-3 Radial variation of solid-to-liquid mass transfer coefficient in a gas-liquid two-phase upflow and in a three-phase fluidized bed.

以上の結果から、以後全ての測定電極を同時に測定回路に接続して得た物質移動係数を、その操作における粒子液間物質移動係数 k_s として用いた。なお、この全電極粒子を同時に用いて得た k_s は、個々の電極で得られた $k_{s,r}$ を平均した値と一致した。

5. 2. 2 粒子液間物質移動係数 k_s の挙動

Fig. 5-4 に不活性粒子を含まず通気もせず液のみを流した場合(以後これを単に液流れ系と呼ぶ)と、不活性粒子を含んだ液固系の両操作における k_s を、液空塔速度 U_l に対してプロットしたものを示す。ここで液固系操作は、流動化開始液速度 U_{mf} よりも大きい U_l で操作した場合の液固流動層、及び U_{mf} よりも小さい U_l で操作した場合の液単相流充填層から成っている。液流れ系の k_s は U_l の増大と共に増大し粒子径 d_p の増大と共に減少する。また液流れ系の k_s は図に示したように Ranz-Marshall [R2] の相関式を用いて推定した値とよく一致した。液単相流充填層における k_s も液流れ系の場合と同様に、 U_l の増大と共に増大し d_p の増大によって減少する。しかし、液単相流充填層の k_s は同じ d_p と U_l で操作した液流れ系の k_s よりも約3倍大きい。

液単相流充填層の k_s が液流れ系の k_s よりも大きい原因が、充填物による流路断面の減少に起因する液と粒子間の相対速度の増大にあるとするならば、充填層の空隙率は約0.4であるから相対速度の増大率は約2.5倍となるが、その流速の増大率に相当する液流れ系の k_s の増大率は

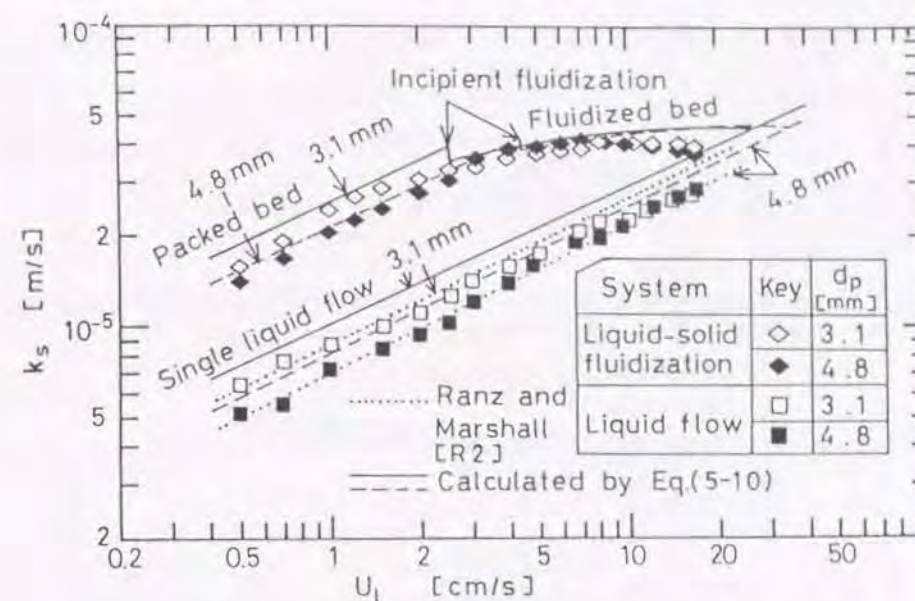


Fig. 5-4 Variation of k_s with U_l in a liquid-solid system and in a single liquid flow.

高々1.6倍であるので、この液線速度の増分だけでは説明できない。そこでもう一つの原因として、不活性粒子が障害物となって液主流が分岐させられることによって生ずる粒子表面近傍で発生する液相の乱れの増大も加わっていることが考えられる。

一方、液固流動層における k_s は、流動化開始から層空隙率が1に接近するまでの U_l の範囲で、ほとんど U_l や d_p の影響を受けない。流動層操作において k_s が U_l の影響を受けなかった原因として、 U_l の増大と共に層膨張が起こり粒子による液分岐作用は減少するが、固液間の相対速度(スリップ速度)は徐々に増大する。これら2つの効果が相殺し合った結果として、 k_s は U_l の変化に対してほとんど一定に保たれたと思われる。

Fig. 5-5 に、気液上昇並流充填層と3相流動層とからなる気液固3相系操作、及び気液2相流における k_s の挙動を示す。いずれの操作においても k_s はガス空塔速度 U_g の増大と共に徐々に増大する。 U_l の k_s に対する影響は、気液系では低ガス流速域で k_s は U_l の減少と共に若干減少し、気液固3相系では通気のない場合の液固系と同様である。

このように、気液系あるいは気液固系操作における k_s は、対応する液流れ系あるいは液固系の k_s に対して、通気による攪乱効果が加わったものとして説明できる。これをさらに詳しく検討すると、液流れ系或は液単相流充填層で U_l が小さいときに少量の通気(U_g にして約0.5 cm/s)を行うと k_s が著しく増大するという興味ある知見が得られた。この k_s の挙動は、以下のように、液或は気体の流れによって生じる液の乱れ強度の影響を考えれば説明できる。まず U_l が小さいとき、粒子周りの液主流そのものによる粒子表面の液乱れは小さい。これに対して、通気したときの気泡の攪乱作用による液乱れは相対的に大きい。一方、 U_l が大きいときには、粒子

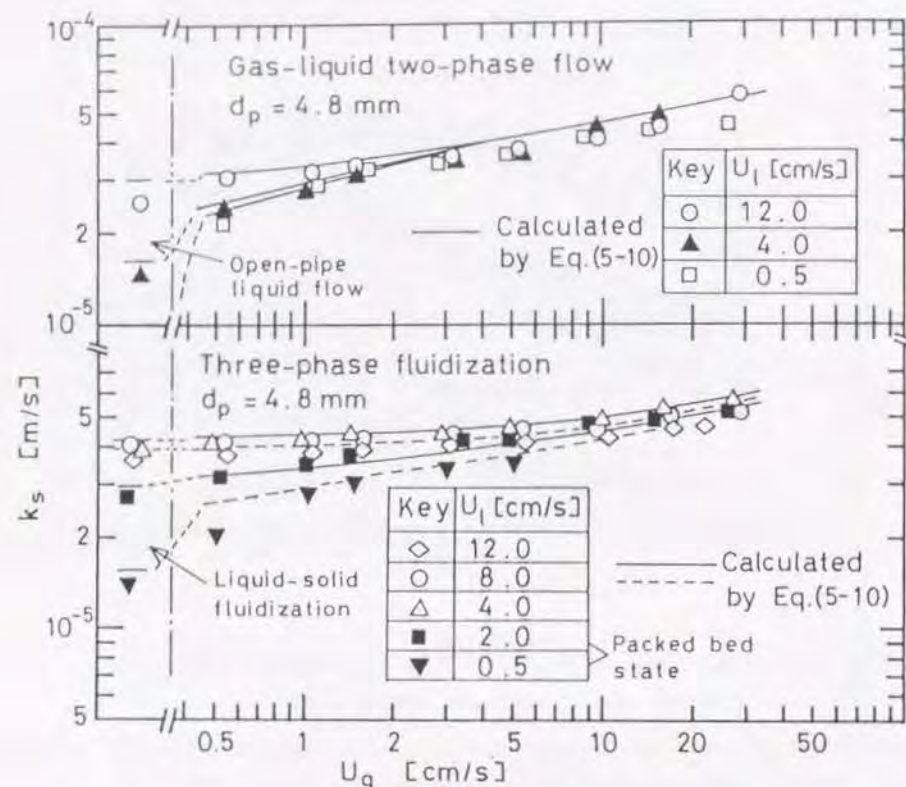


Fig.5-5 Effects of U_g and U_l on k_s in a gas-liquid two-phase upflow and in a three-phase fluidized bed.

周りの液主流そのものによる液乱れが十分に大きくなり、気泡による攪乱作用によって生じる液乱れは相対的に小さくなる。

以上各種多相接触装置の k_s の挙動を見てきたが、それらを総括すると装置内に種々の形で導入された液乱れの強度によって、物質移動速度が決定されるという考えに至る。この考えをもとに次節で k_s の相関を行った。

5.2.3 粒子液間物質移動係数 k_s の相関

一般に、物質移動係数の相関には次元解析等の結果から、次の関係がしばしば用いられる。

$$Sh = f(Re, Sc) \quad (5-2)$$

ここで、 Sh はシャーウッド数、 Re はレイノルズ数、及び Sc はシュミット数である。

5.2.2 の結果から、 k_s は液主流或は気泡の攪乱作用によって生じる液の乱流強度の増大によって増大することが推測できる。しかも、その乱れのスケールは、5.2.1 で示唆し

たように、塔全体にわたるような大規模なものではなくて、粒子近傍におけるミクロなものであることが推測できる。このような乱流の強度の影響を考慮して物質移動係数を相関するために、今日までKolmogoroffの局所等方性乱流理論[H8]が多くの研究者によって用いられてきた。この理論によれば、Eq.(5-2)中の Re を液の乱流強度を表す指標を用いて、以下のように容易に表すことが出来る。

局所等方性乱流場にある乱流渦で最もエネルギー散逸の大きい渦の大きさと速度のスケール η 及び ν は、それぞれ次式で与えられる。

$$\eta = (\nu_l^3 / E)^{1/4} \quad (5-3)$$

$$\nu = (\nu_l E)^{1/4} \quad (5-4)$$

ここで、 E は液の単位質量当りのエネルギー散逸速度であり、 ν_l は液体の動粘度である。局所等方性乱流場において、距離 d 間の代表速度すなわち速度変動成分の2乗平均 $\sqrt{v_d^2}$ は、 d と η の大きさを比較して以下のように与えられる。

$$\begin{aligned} \eta \ll d \ll L \text{ のとき} \\ \sqrt{v_d^2} \approx (E d)^{1/3} \end{aligned} \quad (5-5)$$

$$\begin{aligned} \eta \gg d \text{ のとき} \\ \sqrt{v_d^2} \approx d (E / \nu_l)^{1/2} \end{aligned} \quad (5-6)$$

ここで、 L は乱流場における最大渦の大きさのスケールであり、通常反応器寸法のオーダーである。

これらの関係を直径 d_p の粒子周りの乱流場に適用すると、 Re は上の2つの領域に対して、それぞれ次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \eta \ll d_p \ll L \text{ のとき} \\ Re = c_1 (E d_p^4 / \nu_l^3)^{1/3} \end{aligned} \quad (5-7)$$

$$\begin{aligned} \eta \gg d_p \text{ のとき} \\ Re = c_2 (E d_p^4 / \nu_l^3)^{1/2} \end{aligned} \quad (5-8)$$

ここで c_1 、 c_2 は定数であるから、 Re はエネルギー散逸パラメータ $E^{1/3} d_p^{4/3} / \nu_l$ と等価な

関係にあることがわかる。

Ohashiら[O2]は、液流れ中に固定された単一球及び液単相流充填層における粒子からの k_s に関する多くの既往の実験データを、上に述べた局所等方性乱流理論から引き出した結果に基づいて再検討し、これらの k_s は、広範囲の操作条件下において、それぞれ次の相関式によって表されることを見出した。

液流れ中の単一球に対して

$$Sh_s = 2 + 0.59 (E^{1/3} d_p^{4/3} / \nu_l)^{0.57} Sc^{1/3} \quad (5-9)$$

液単相流充填層の粒子に対して、

$$Sh_s = 2 + 0.51 (E^{1/3} d_p^{4/3} / \nu_l)^{0.60} Sc^{1/3} \quad (5-10)$$

ここで、 $Sh_s = k_s d_p / D_l$ 、 $Sc = \nu_l / D_l$ である。ところで、エネルギー散逸パラメータが $1 \sim 10^4$ の範囲においては、これら2つの相関式によって計算される Sh_s の差は最大約20%と小さく、これらを用いて実験値を相関する場合、実験値の誤差を考慮すれば両式とも相関精度はほぼ同等とみなせる。Kikuchiら[K14]はEqs. (5-9), (5-10)が液固流動層の k_s の相関に対して有効であると報告した。更に、懸濁気泡塔[S2, S3]や攪拌槽[L3]においても、これらの装置における k_s をエネルギー散逸パラメータを用いて、Eqs. (5-9), (5-10)と類似な式で相関した。

液相中のエネルギー散逸速度は、乱流場が定常に保たれている条件下では、連続的に液相に種々の形で供給されている運動エネルギーの総量に等しい。これを模式的に表せば、Fig. 5-6のようになる。液ポンプ、コンプレッサー等の機械的エネルギー源によって装置内に供給された全運動エネルギーは、①粒子周りの液主流からの抗力による、②気泡の攪乱作用による、及び③塔壁面のせん断応力による、の3つのエネルギーの合計によって与えられ、これらの運動エネルギーが乱流場において連続的にスケールの小さい渦を生じ最終的に熱エネルギーとなって消散する定常的なエネルギーの流れが生じている。従って、 E の値は上記の3つの運動エネ

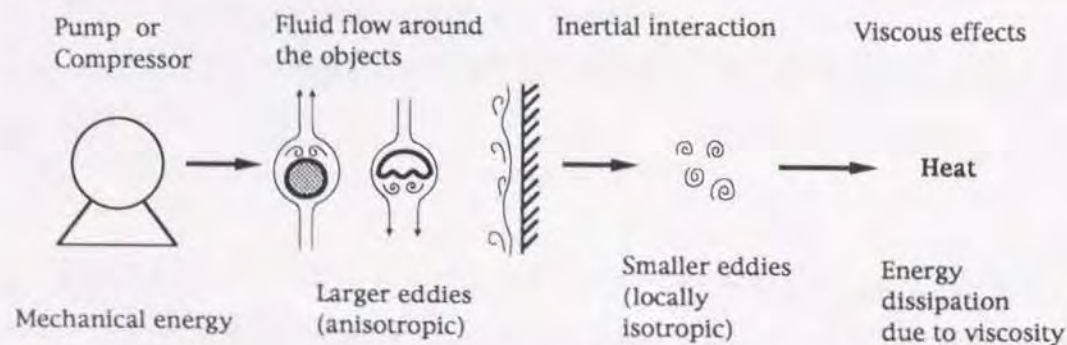


Fig. 5-6 Kinetic energy transfer to heat through isotropic turbulence energy

ルギー供給源からの寄与を合計して、次式によって与えられる。

$$E = (\Delta P_d / d_p) U_l / (\epsilon_l \rho_l) + U_g g + (\Delta P_w / H) U_l / (\epsilon_l \rho_l) \quad (5-11)$$

ここで、 ΔP_d は直径 d_p の粒子周りを液主流が通過するときに生ずる抗力による圧力損失であり、 ΔP_w は粒子層高 H を液主流が通過するときに生ずる壁面摩擦抵抗による圧力損失である。Table 5-3に種々の液固系及び気液固系操作における ΔP_d を求める式を示す。なお、気液上昇並流充填層においては ΔP_d を表す有効な式が見あたらないので実測値を用いざるを得ない。

Table 5-3 Equations for evaluation of pressure drop across a particle in various flow systems

System	Equations for ΔP_d
Packed bed with liquid flow	$\Delta P_d = (150 \mu_l U_l / d_p) (1 - \epsilon_l)^2 / \epsilon_l^3 + 1.75 \rho_l U_l^2 (1 - \epsilon_l) / \epsilon_l^3 \quad (\text{Ergun}[E7])$ <p>or</p> $\Delta P_d = 100 (1 - \epsilon_l) C_{D0} \rho_l U_l^2 / 2, \text{ where } C_{D0} \text{ is drag coefficient for a particle fixed in liquid flow at a rate of } U_l. \quad (\text{Shirai}[S6])$
Packed bed with gas-liquid concurrent upflow	$\Delta P_d \text{ is the dynamic pressure drop corrected for the liquid head from the static pressure drop.}$
Single particle in liquid flow	$\Delta P_d = C_{Dr} \rho_l U_r^2 / 2,$ <p>where U_r is relative velocity and C_{Dr} is drag coefficient for a particle flowing at a rate of U_r against liquid.</p>
Particles in fluidization	$\Delta P_d = \epsilon_l C_{Di} \rho_l U_i^2 / 2$ <p>where C_{Di} is drag coefficient for a particle flowing at a rate of U_i against liquid. (Ishii and Zuber[I3])</p>

Eq.(5-11)を代表的な操作系に適用して得られた E の値をFig.5-7に示す。単一球周りの流れ、液単相流充填層及び液固流動層の E はEq.(5-11)の右辺第1項目を用いて計算できる。一方、気液2相流の E は U_l が100cm/s以下ではEq.(5-11)の右辺第2項目を用いて計算できる。次に各操作における E を比較すると、液単相流充填層の E は液流れ中におかれた単一球周りの E よりも2桁大きい、いずれも U_l や d_p に対する挙動は同じである。液固流動層における粒子周りの E は、 U_l や d_p の影響をあまり受けず、充填層における E と液流れ中におかれた単一球周りの E の中間にあって、しかも流動化開始時で充填層操作の値に、終末速度において液流れ系操作の値にそれぞれ漸近することから、これら両操作における値の掛け橋となっている。気液2相流における E は、液固流動層における粒子周りの E とほぼ同じオーダーにある。他方、壁面摩擦抵抗による E （すなわちEq.(5-11)の右辺第3項目）は、図に示すように、他のいずれの E よりも数桁小さく、本研究で行ったような気液、液固系などの多相接触装置においては無視できる。この第3項目が多層接触操作で影響してくるようになる場合は、 U_l の極めて大きい高速気液2相流や粒子輸送層操作の場合が考えられる[O1,O3]。

Table5-3に与えられた流動層操作の ΔP_d をEq.(5-11)に代入すれば未知パラメータである ϵ_l は消去され、Eq.(5-11)の右辺第1項目は U_l のみの関数となる。従って、3相流動層における

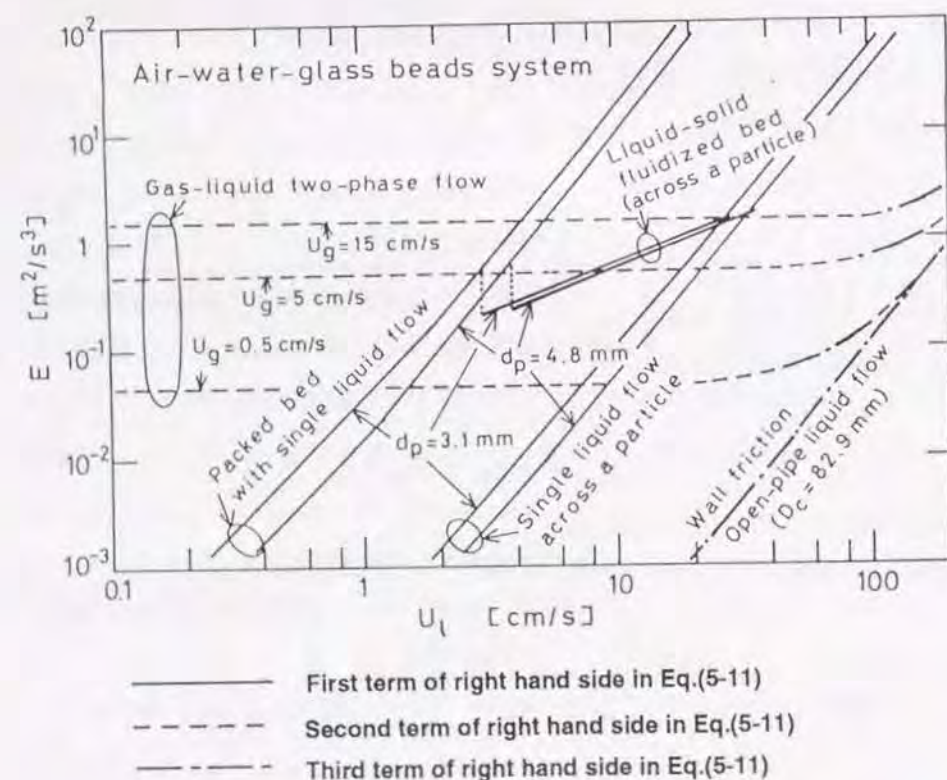


Fig.5-7 Typical values of E in various gas-liquid and liquid-solid flow systems.

E は、対応する U_l の液固流動層における E と、対応する U_g の気液2相流における E を加えたものに等しい。気液並流充填層においても、通気によって生ずる全 E の増大に対して、Eq.(5-11)の右辺第2項目が大きく寄与するので、全 E の近似値として液単相流充填層及び気液2相流のそれぞれの E を加えた値で与えられる。

以上の E に関する検討から、気液系、液固系及び気液固系操作における E の挙動は、先に示した k_s の挙動と極めて良好な相似の関係があることがわかる。このことは E が、 k_s を相関するための有力な因子であることを示唆している。

Fig.5-8に、3相流動層とそれに関連した種々の操作形態における k_s の本実験結果を、Ohashiら[O2]及びKikuchiら[K14]に従って、エネルギー散逸パラメータを用いて相関した結果を示す。この図から、全ての k_s は、Eq.(5-9)またはEq.(5-10)のどちらを用いても良好に相関できた。これらの式による k_s の推定値の実験値に対する標準偏差は、いずれの式に対しても約0.26であった。Eq.(5-10)を用いて推定した k_s の値をFigs.5-4,5-5に示した。 k_s の推定値は実験値とよく一致していることがわかる。

この結果から、エネルギー散逸パラメータ $E^{1/3} d_p^{4/3} / \nu_l$ は、気液系、液固系及び気液固系操作において、粒子液間物質移動現象を支配する流動現象を有効に評価するパラメータであると言える。

次に、Sanoら[S2]によって提出された懸濁気泡塔における Sh_s 対 $E^{1/3} d_p^{4/3} / \nu_l$ の関係を、比較のためにFig.5-7に示す。懸濁気泡塔の Sh_s は、 $E^{1/3} d_p^{4/3} / \nu_l$ に対してEq.(5-10)の関係よりもやや大きい依存性を示しており、 $E^{1/3} d_p^{4/3} / \nu_l > 100$ においては、流動層や充填層の Sh_s よりも大きくなる。この差異は、懸濁気泡塔で使用される粒子の大きさが、流動層や充填層などの場合と比較すると通常1～2桁小さいために、 k_s に対する d_p の影響が本実験系の場合とは異なったものになったことが考えられる。

これをエネルギー散逸の観点に立って考えると、各操作系において使用された粒子の大きさによって、Eqs.(5-5),(5-6)で示されるように、粒子周りの物質移動に対して有効に働く速度成分が異なったものになったことが推測される。そこで実際にエネルギー散逸渦のスケール η の値を推算すると、懸濁気泡塔操作においては略30～70 μ mとなり、3相流動層操作においては、これよりもやや小さい値となる。従って η と d_p を比較すると、懸濁気泡塔操作では両者はオーダー的に等しくなり、 Re を決定する代表速度 $\sqrt{v_d^2}$ の値はEq.(5-5)とEq.(5-6)の条件の境界付近に当たる。一方、3相流動層操作においては、 η と d_p を比較するとほぼEq.(5-5)の条件を満足している。従って懸濁気泡塔と3相流動層では、 Re と $E^{1/3} d_p^{4/3} / \nu_l$ の関係が、Eqs.(5-7),(5-8)で示されるように異なったものとなり、その結果、 Sh_s の $E^{1/3} d_p^{4/3} / \nu_l$ に対する依存度が、両操作では若干異なると推論できる。

k_s の d_p 依存性に関して、斉藤ら[S1]及びHarriot[H4]は $d_p = 0.3 \sim 2$ mmの間では k_s は d_p に依存しないが、 $d_p < 0.3$ mm及び $d_p > 2$ mmの領域では k_s は d_p の増大と共に減少すると報告

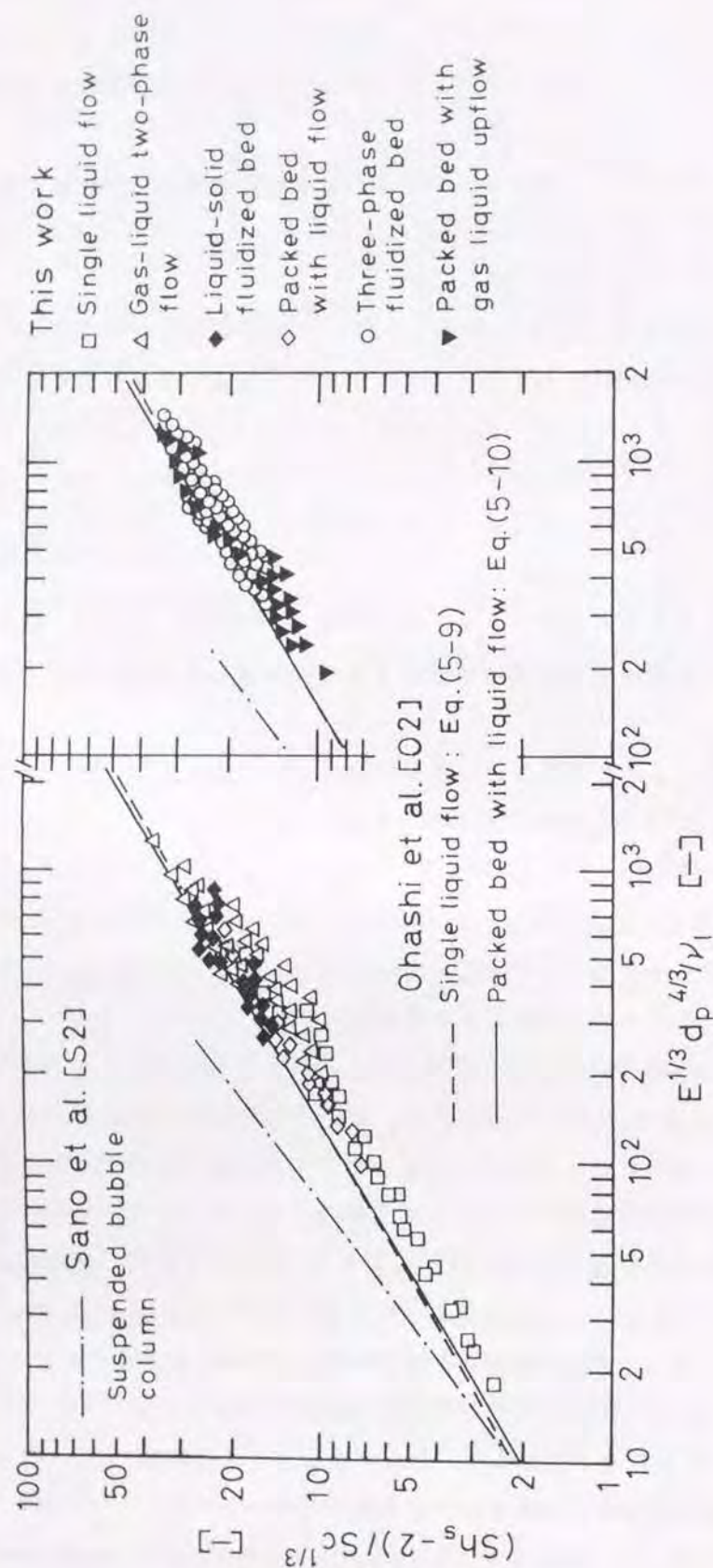


Fig.5-8 $(Sh_s - 2) / Sc^{1/3}$ vs. $E^{1/3} d_p^{4/3} / \nu_l$ for the present results in various flow systems.

している。これも上で述べたエネルギー散逸の考え方に基づく推論の結果と符合している。

5. 2. 4 3相流動層および気液上昇並流充填層の k_s に関する既往の結果との比較

Artersら[A5]は液固及び3相流動層の k_s を安息香酸粒子(密度 $\rho_s=1300\text{kg/m}^3$)の溶解速度から求め、3相流動層の k_s は液固流動層の k_s と比較して150%も大きいと報告した。Prakashら[P2]は安息香酸をコーティングしたガラス球の溶解速度から k_s を求め、通気による k_s の増大効果はArtersら[A5]の結果ほど大きくなかったと報告した。Nikovら[N8]は限界電流法により3相流動層の k_s を測定し、流動化粒子の密度が小さくなるほど通気による k_s の増大効果が顕著に現れると報告した。

これら3相流動層の k_s に関する既往のデータを、エネルギー散逸パラメータを用いて再検討した。前にも述べたように、流動場が定常状態に保たれている場合には、液相中のエネルギー散逸速度は液相に供給されるエネルギー供給速度に等しい。流動化している粒子の密度が小さい場合には、操作する液流速が小さくなるので、液主流による液相への運動エネルギーの供給速度が小さくなる。そのため、気泡の攪乱作用によって液相に供給される運動エネルギーの供給速度が他のものに対して相対的に大きくなり、その結果として通気速度が k_s に支配的に影響するようになる。逆に流動化させる粒子の密度が大きいと、粒子の流動化のために必要な液流速を大きくしなければならない。そのため、液主流によるエネルギー供給速度が通気によるそれを上回るようになる。

この様に、既往の k_s データもエネルギー散逸パラメータを用いれば、 k_s に及ぼす種々の操作因子の影響をうまく説明できる。そこで、Artersら[A5]、Prakashら[P2]、及びNikovら[N8]の k_s データを、本研究と同様にしてEq.(5-11)を適用して得たEを用いて整理したところ、Fig.5-9に示す様に、これらの k_s もEq.(5-10)によって良好に表されることがわかった。

さらに、気液並流充填層における既往の k_s に関するデータ[D9,M8,Y4]にも本相関法を適用してFig.5-9にプロットしたところ、これらの k_s のデータもEq.(5-10)によって良好に表されることがわかった。

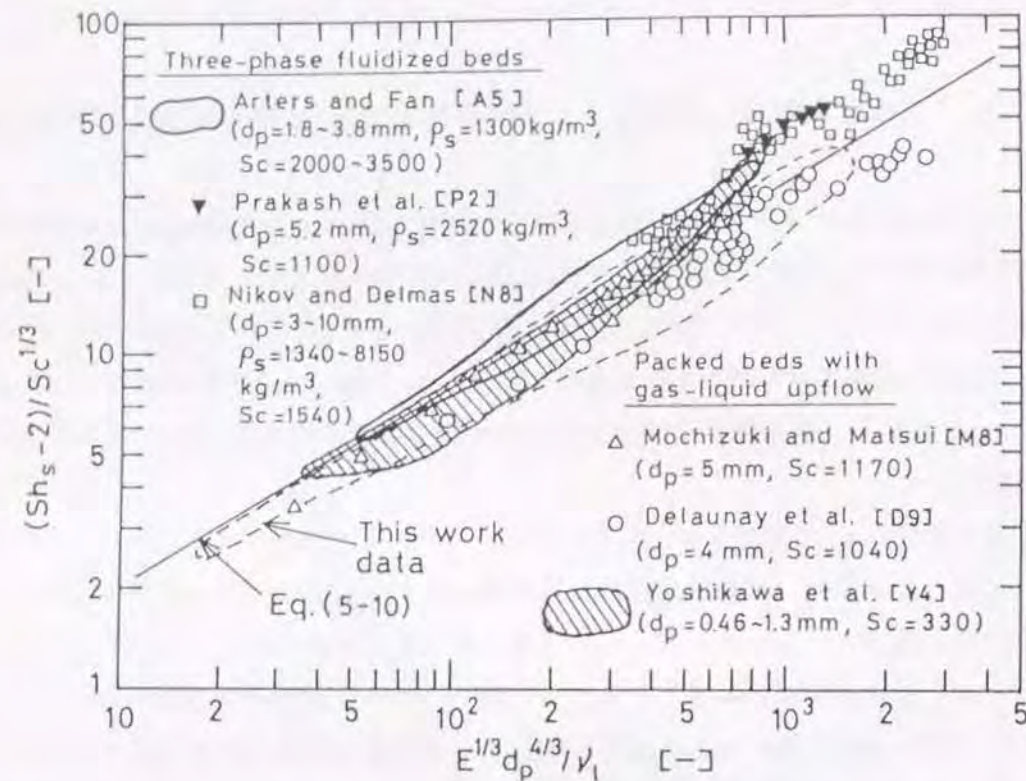


Fig.5-9 Comparison of Eq.(5-10) with the published data on k_s in three-phase fluidized beds and in packed beds with gas-liquid upflow.

緒言

流動層操作を電気化学的反応器に応用する研究が、活発に行われるようになった。例えば、液固流動層を応用したGoodridgeら[G4]の無機及び有機電極反応、Coeuret[C5]、Fleischmannら[F5]の金属イオンの電解採取、スラリー反応器を応用したCoughlinら[C6]の石炭粒子と水からの水素の製造、また、3相流動層を応用したOlomanら[O4]の酸素からの過酸化水素の製造などの例が挙げられる。

このように、3相流動層は電気化学的反応器として有望と考えられるが、これを合理的に設計し運転するためには、層内の電極表面における物質移動係数に関する知見を得る必要がある。実用装置においては、電極表面積を大きくするために、層内を平板電極で仕切るか、または、円柱状電極を多数挿入する方法が考えられる。前者の場合には、平板電極の末端部が矩形となり流れに淀みが生じ易い。後者の場合には、層内断面全域にわたって、ほぼ均一な流動状態を保つことが出来る。従って、円柱電極を用いた方が全電極表面で均一な物質移動速度が得られ、的確な装置性能の評価が出来る。

一方、壁面液間の物質移動は、壁面層間の伝熱との間にアナロジーが成立すれば、壁面伝熱現象の解明に有力な手段となる。ところでWasmundら[W4]は、液固流動層の壁面と流動層間の伝熱においては、粒子層を通しての伝熱の寄与は小さく、液相の対流伝熱が支配的になっていると報告した。3相流動層においては、気相が存在するが、壁近傍におけるガスホールドアップは非常に小さい(第3章参照)ので、壁近傍は液相及び固相によって占められていると考えてよい。従って、3相流動層においても、液固流動層の場合と同様に、壁面近傍における伝熱は液相の対流伝熱によっていると考えられる。こう考えると、3相流動層の壁面における伝熱と物質移動にはアナロジーが成立すると推測できるが、これに関する研究報告はまだ見あたらない。

しかも、液固流動層における k_w を扱った研究[I4,J1,M9,S8]は多数あるが、3相流動層の壁面液間物質移動を扱った研究には、諸岡ら[M9]の矩形流動層を用いて行った報告があるに過ぎない。

以上3相流動層の壁面液間物質移動特性は電気化学的反応器の設計及び伝熱特性とのアナロジーの両面で重要な反応工学的特性値である。そこで本章では、以下に述べる3つの問題の解明を行った。

(1) 3相流動層における壁面液間物質移動係数 k_w を、流動層の塔内壁面及び層内中心軸上に挿入した円筒表面においてそれぞれ測定し、 k_w に及ぼす物質移動表面の幾何学的寸法の影

結言

塔内の半径方向の異なる位置に7～9個の電極粒子を固定し、電極粒子と直径がほぼ等しい不活性粒子を流動化あるいは充填した気液固系操作において、粒子液間物質移動係数 k_s を限界電流法により測定し、以下の結論を得た。

- (1) 塔断面全体の電極粒子から得られた平均の k_s に対する壁近傍での k_s の偏倚はわずかであった。これから、3相系操作において k_s の半径方向分布は、ほぼ一様であることがわかった。
- (2) 3相流動層における k_s は、類似した装置形態を持つ液固流動層や液単相流及び気液上昇並流充填層等の種々の多相接触装置における k_s と同様に、液単位質量当りのエネルギー散逸速度 E を用いた相関式Eq.(5-10)によって良好に表された。ここで、 E の値は粒子周りの液主流によって生ずる抗力及び気泡による攪乱作用によって液相中に供給される運動エネルギーの合計としてEq.(5-11)によって与えられる。

響についても調べた。

(2) 3相流動層の壁面液間物質移動現象は、粒子の存在によって生ずる種々の流体力学的効果(例えば、粒子の攪乱作用や液線速度の増大)や気泡による攪乱作用などのために、極めて複雑になると推測される。そこで、3相流動層と類似の装置形態を持つ種々の気液系、液固系及び気液固系操作、例えば液単相流及び気液上昇並流充填層、気液2相流及び液固流動層などにおける k_w も併せて測定し、これらの k_w を3相流動層の k_w と比較することによって、操作形態の違いによる k_w の挙動の類似点や相違点を明らかにした。これを基に、3相流動層の壁面液間物質移動機構の検討を行った。

(3) 以上の結果を基にして、3相流動層を含めた種々の多相接触装置における k_w の相関を行った。第5章で粒子液間物質移動係数を検討したときと同様に、液単位質量当りのエネルギー散逸速度を用いることによって、 k_w に対する1つの統一した相関式を作成した。

なお、壁面における物質移動と伝熱とのアナロジーについては、第7章において伝熱特性を明らかにした後、本章における結果を統合して検討する。

6. 1 実験装置および方法

本研究で使用した塔本体、及びそれに付随する気体及び液体の供給ラインなどの実験装置の構成は、第5章で粒子液間物質移動係数を測定するときに使用したものと基本的に同一のものである。壁面液間物質移動係数を測定するために使用した塔本体部の電極構造と測定用電気回路をFig. 6-1に示す。塔本体は気液整流部とそれに続く流動層部からなり、流動層部下部の長さ0.564mの部分は物質移動係数測定のための測定部となっている。測定部は内径82.9mm、厚さ3mmのニッケル円筒で、6個に輪切りにされた独立した電極からなっている。この6個の塔内壁面電極は互いに絶縁されており、フランジによって同軸上に直列に結合されている。更に各電極の表面は鏡面状に仕上げられている。これらの塔内壁面電極の寸法をTable 6-1に示す。

流動層部の中心軸上に外径3、10及び25mmの3種類の円筒状電極の1つを挿入した。直径3mmの電極はニッケル棒であり、流動層部入口から塔頂まで貫通している。直径10及び25mmの電極は、4個に分割された銅管にニッケルメッキを施し、それぞれ互いに絶縁して直列に同軸上に固定したものである。この固定された円筒電極の全長は塔内壁面電極のそれにほぼ等しくした。また円筒電極を構成する個々の電極は、測定部上端で塔外から挿入した導線と管の内側で接続されている。さらに円筒電極部の上部には、外径の等しいプラスチック管を同軸上に流動層部の上端まで達するように結合した。使用した全ての挿入円筒電極の寸法の詳細をTable 6-1に示す。

塔内壁面電極と挿入円筒電極を両極とする限界電流法(第5章参照)により、壁面液間物質移

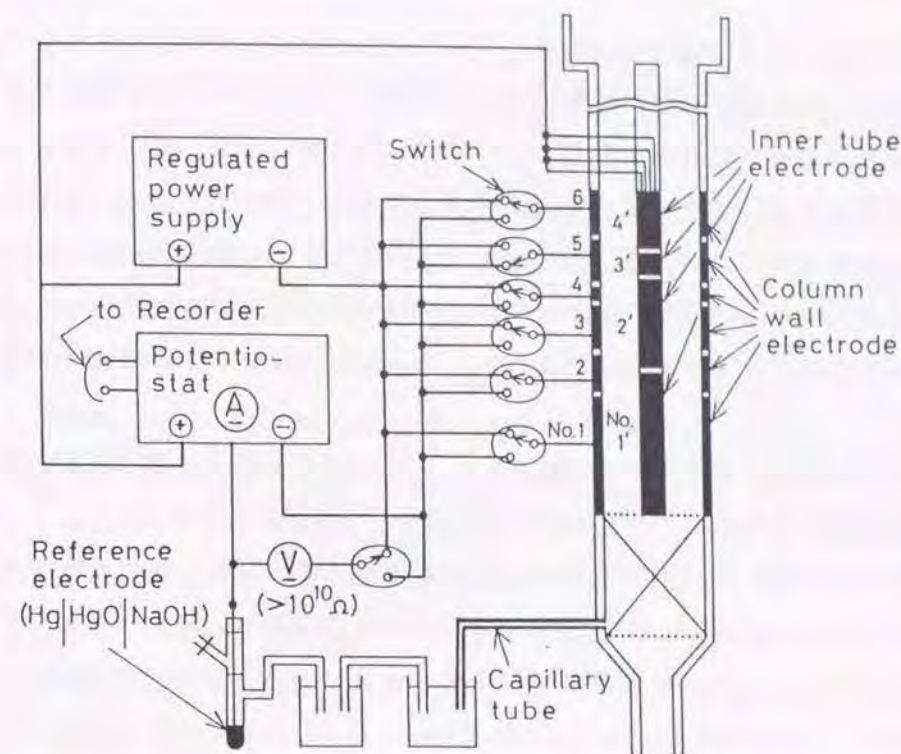


Fig.6-1 Experimental setup for measuring wall-to-liquid mass transfer coefficient.

Table 6-1 Dimensions of column wall and inner tube electrodes

Column wall electrode	No.	1	2	3	4	5	6
	L [mm]	240	80	80	4	80	80
Inner tube electrode	$D_i = 10\text{mm}$	No.	1'	2'	3'	4'	
		L [mm]	252	174	13	119	
	$D_i = 25\text{mm}$	No.	1'	2'	3'	4'	
		L [mm]	250	167	13	132	
	$D_i = 3\text{mm}$	Entire rod was used as single electrode (L = 2m)					

動係数 k_w を測定した。測定は第5章と同様、ポテンシオスタットを電源とした定電圧法によった。

まず塔内壁面における物質移動係数 $k_{w,c}$ を測定する場合、塔内壁面電極を陰極、挿入円筒電極を陽極とし、測定極となる陰極側の個々の電極は、スイッチにより測定用電気回路と結ばれている。これは個々の測定極の任意の1つについて、あるいはそれらを組み合わせたものについて、限界電流を取り出せるように回路設計してあり、図に示した例では塔内壁面No. 5電極のみ測定回路と接続されている。他の陰極は別の直流電源回路と接続し、液本体に対する陰極電位を測定極におけるそれに一致させた。この様に電源を2系統で使用したのは、測定極近傍の電場の乱れを除去するためと、測定極入口端の濃度境界層を予め発達させておくためである。

次に、挿入円筒表面における物質移動係数 $k_{w,i}$ を測定する場合には、挿入円筒電極を陰極、塔内壁面電極を陽極とする。その他の測定手順は $k_{w,c}$ の場合と同様である。

電解液は第5章で用いたものと同様であり、支持電解質として水酸化ナトリウムを0.2mol/lの濃度を含み、約 1×10^{-3} mol/lの濃度のフェリシアン化カリウムおよびそれとほぼ同じ濃度のフェロシアン化カリウムからなる酸化還元系混合溶液である。液物性は、密度=1006kg/m³、粘度=1.05mPa·s 及びシュミット数=1500である。フェリシアンイオン及びフェロシアンイオンの濃度はヨウ素滴定法により求めた。ここで塔内壁面電極を測定極としている場合、陽極側の過電圧のためフェリシアンイオンの濃度が k_w の測定中に徐々に減少する。そのため $k_{w,c}$ と $k_{w,i}$ をある操作条件に対して求める1組の測定毎に、フェリシアンイオンの濃度の測定を行った。気体にはチッ素を使用した。固体粒子には篩分けしたガラス球(密度=2500kg/m³)を使用した。流動層操作及び充填層操作において使用した粒子の大きさ及び気液の流速の操作範囲をTable 6-2に示す。

6. 2 実験結果および考察

6. 2. 1 壁面液間物質移動係数 k_w の軸方向分布

塔内壁面電極のNo. 1～6、及び直径 $D_i=25$ mmの挿入円筒電極のNo. 1'～4'を、それぞれ単独に測定極とした場合に得られた壁面液間物質移動係数 k_w を、いくつかの操作条件に対してFig. 6-2に示す。層入口における電極(塔内壁面側ではNo. 1、挿入円筒側ではNo. 1')の k_w は、その後続く電極の k_w よりも幾分高い値を示す。この原因としては、層入口近傍では境界層の未発達域及び流動状態が軸方向に過渡的に変化する領域が含まれていることが考えられる。しかし、 $z > 0.24$ m ($z/D_c > 3$)における各電極の k_w は、それぞれ±5%以内で一致しており、この部分は境界層が十分発達した領域と考えられる。また3相流動層では、挿入円筒側の k_w が塔内壁面側の k_w よりも若干大きい。そこで、層内の流動状態が安定している領域で、かつ

Table 6-2 Size of glass beads and experimental conditions

Fluidization systems					
d_p [mm]	Mesh size [mesh]	U_l [cm/s]	U_g [cm/s]	n [-]	U_i [cm/s]
0.77	20-24	0.5-12	0-17	3.24	12.5
1.1	14-16	0.5-13	0-17	2.91	14.2
3.1	6-7	0.5-20	0-17	2.39	26.0
4.8	3.5-5	0.5-20	0-17	2.39	34.2
Packed bed systems					
d_p [mm]	Mesh size [mesh]	U_l [cm/s]	U_g [cm/s]		
1.1	14-16	0.5-6	0		
3.1	6-7	0.5-15	0-30		
6.2	3-3.5	0.5-17	0-30		

電極特性が最も安定している塔内壁面電極No. 5 及び挿入円筒電極No. 2' 或は3' において得られた物質移動係数を、それぞれ塔内壁面側物質移動係数 $k_{w,c}$ 及び挿入円筒側物質移動係数 $k_{w,i}$ として、以後の結果及び考察に使用した。

6. 2. 2 壁面液間物質移動係数 k_w の挙動

(a) 充填層の k_w の挙動

Fig. 6-3 に液単相流充填層における k_w を示す。図に示した全ての粒子及び液空塔速度 U_l において、 $k_{w,c}$ と $k_{w,i}$ の差はほとんどない。 k_w は U_l の約0.6乗に比例して増大し、粒子径 d_p の増大と共に減少する。また、本実験値は Yagiら[Y1]の相関式による値ともほぼ一致する。

Fig. 6-4 に $D_i=25\text{mm}$ 、 $d_p=3.1\text{mm}$ の条件における気液上昇並流充填層の k_w を示す。気液上昇並流操作の場合においても、液単相流の場合と同様に $k_{w,c}$ と $k_{w,i}$ とはほぼ同じ値である。 k_w は U_l 及びガス空塔速度 U_g の増大と共に増大する。 D_i 及び d_p を変化させても、上述と同様の傾向が得られた。

(b) 液固流動層の k_w の挙動

Fig. 6-5 に液固流動層における k_w を、粒子を含まず液のみを流した液空塔流れにおける k_w と共に、 U_l に対してプロットしたものを示す。但し、液空塔流れで層流域の k_w は、測定電極全部を一体として得た値である。液固流動層の流動化開始液速度以下の領域では、粒子層は充填層の状態にあり、このとき得られた k_w は先の Fig. 6-3 の液単相流充填層の結果とよく一致している。また充填層状態にあるときの k_w は、液空塔流れの k_w と比較して1桁大きい。しかし、

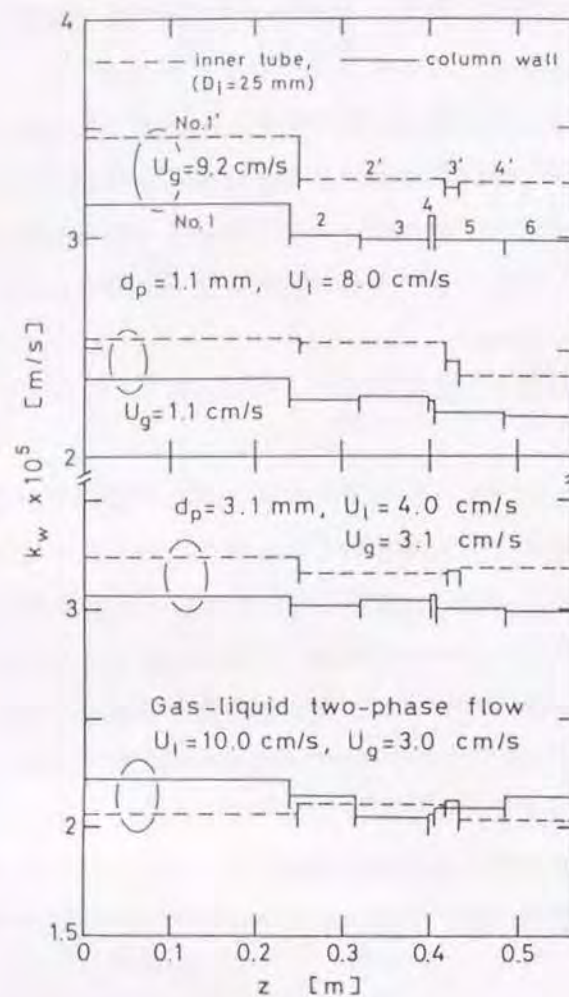


Fig. 6-2 Axial variation of k_w for the column wall and for the inner tube.

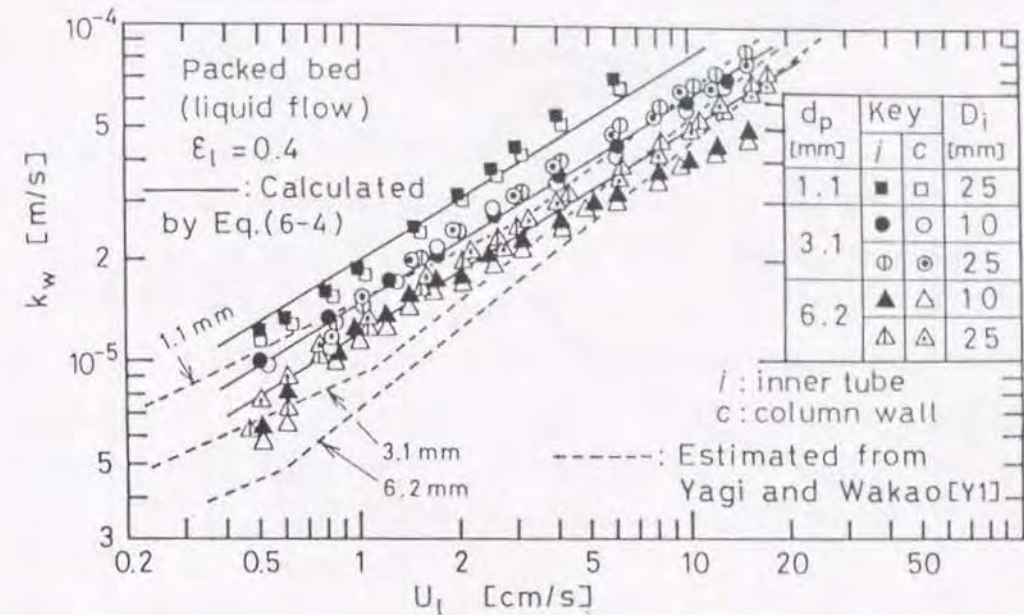


Fig. 6-3 Variation of k_w with U_l in packed beds with single liquid flow.

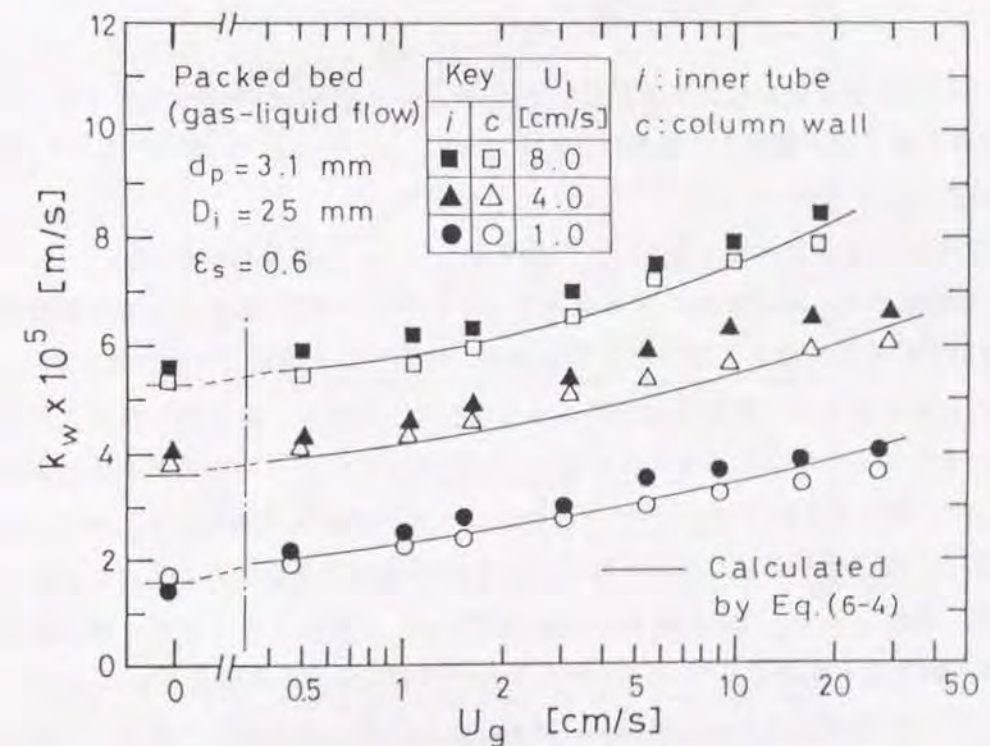


Fig. 6-4 Effect of U_g on k_w in a packed bed with gas-liquid concurrent upflow.

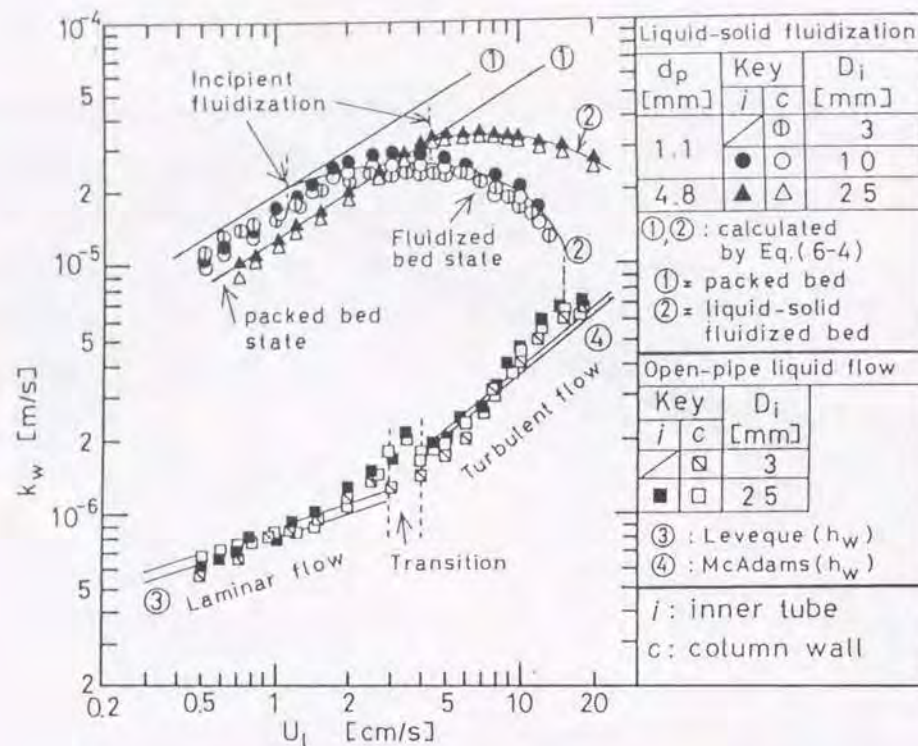


Fig. 6-5 Variation of k_w with U_l in a liquid-solid fluidized bed and in an open-pipe liquid flow.

U_l を増大させ粒子層が流動化すると共に、 U_l の増大による k_w の増加の程度は低下し、やがて k_w は最大値を経て逆に減少し、流動層の終末状態($U_l=U_i$ のとき)においては、 k_w は液空塔流れの値に漸近するようになる。

D_i を変えることによる $k_{w,c}$ 、 $k_{w,i}$ への影響はほとんど認められない。

Fig. 6-5の結果から、層が流動化する液速度よりも小さい U_l で操作した充填層領域における k_w は、層の空隙率を考慮して求めた液の線速度に対応する液速度での空塔流れの k_w に比べて数倍大きい。したがって、粒子の存在による k_w の増大効果は、液主流が粒子と衝突して分岐させられ、それによって生じる液本体の乱れに起因していることは明白である。液固流動層における k_w は、対応する U_l において同一粒子を用いた液単相流充填層の k_w よりも常に小さい。このことより、粒子層の膨張によって粒子そのものは活発に運動するようになるが、この粒子の攪乱作用に起因する k_w の増大効果はほとんどないことがわかる。また、流動層操作における k_w が最大値をとる原因として、 k_w に対して粒子の攪乱作用の影響がないことから、 U_l が増大するにつれて粒子濃度が徐々に減少し、それによって液主流が粒子と衝突し分岐するときに生ずる液本体の乱れが減少し、この乱れの減少分が、ある U_l 以上で U_l の増大による液流れそのものが持っている乱れの増大分を上回ったことが考えられる。

ところで、液空塔流れにおける k_w は、層流域ではLeveque[L2]の理論式を、また乱流域ではMcAdams[M3]の壁面伝熱係数に対する相関式を、それぞれ伝熱と物質移動との相似則に基づいて物質移動の場合に変換した式からの計算値とよく一致している。

(c) 気液2相流および3相流動層の k_w の挙動

Fig. 6-6に気液2相流及び3相流動層における k_w に対する D_i の影響を示す。全 U_g 、 U_l 域にわたって k_w に及ぼす D_i の影響は小さい。しかし、気液2相流及び d_p が小さい3相流動層においては、高 U_g で操作した場合、 $k_{w,i}$ は $D_i=10\text{mm}$ の場合やや増大する。この D_i が小さいときに $k_{w,i}$ が大きくなった原因は、挿入円筒周りの境界層が円筒の幾何学的形状そのものに影響されたためよりもむしろ、塔中心部を多く通過する気泡(第3章参照)による攪乱作用の影響を強く受けたためと考えられる。従って、層内横断面におけるホールドアップや流速分布が一樣であれば、 $k_{w,i}$ と $k_{w,c}$ は互いに一致するようになると考えられる。

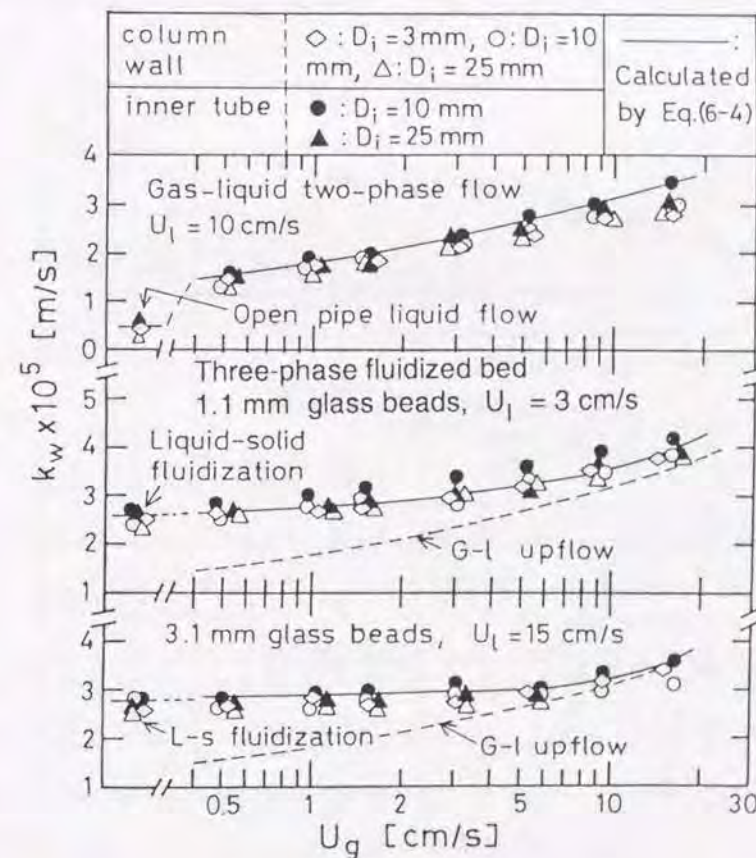


Fig. 6-6 Effect of inner tube size on k_w in a gas-liquid two-phase upflow and in a three-phase fluidized bed.

Fig. 6-7に気液2相流及び3相流動層における k_w に及ぼす U_g 、 U_l 及び d_p の影響を示す。なお、ここに示す k_w は塔内壁面電極で得られた値 $k_{w,c}$ である。3相流動層及び気液2相流どちらの k_w も U_g の増大と共に増大するが、 k_w に対する通気の影響が各種操作形態によって大きく異なることが注目される。その特徴を要約すれば、以下の3点が挙げられる。①液空塔流れに少量の通気(U_g にして約0.5cm/s)を行って気液2相流を形成することによって、 k_w は約1桁増大する。②液固流動層に少量の通気を行っても k_w の増大は僅かである。③ U_l の小さい液単相流充填層に少量の通気を行うと、 k_w は約30%増大する。

この様に、各種操作形態或は液流速によって k_w に対する通気の影響が異なるのは、通気無しの状態における壁面近傍の液相の乱れの大きさと、気体を導入し気泡が上昇するときに生ずる攪乱作用による乱れの大きさととの相対的關係によると考えられる。このことと、先に述べた液固流動層操作における k_w に及ぼす U_l の影響を考え合わせると、物質移動速度を決定する流体力学的な因子として、液相中に種々の形で加えられる乱れの強度の合計が重要となることが考えられる。これは第5章で粒子液間物質移動係数 k_s を決定する因子について行った論議を、粒子周りから壁面近傍に場を置き換えて適用したものと本質的に同じと言える。

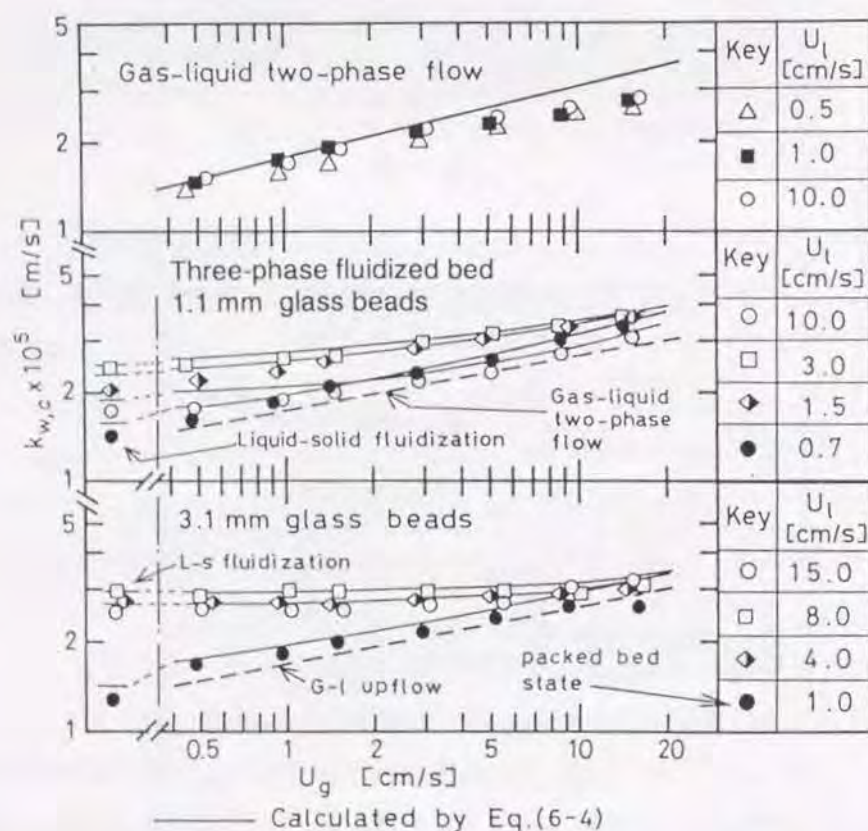


Fig. 6-7 Effect of U_g and U_l on k_w for the column wall in a gas-liquid two-phase upflow and in a three-phase fluidized bed.

6. 2. 3 壁面液間物質移動係数 k_w の相関

k_w を決定する流体力学的な因子として、液相中の乱れの強度が考えられることから、 k_w の相関に対しても、第5章で k_s の相関に対して行ったエネルギー散逸パラメータを用いた方法が有効と考えられる。但し、物質移動に有効な場としては、粒子周りの場を壁面近傍の場に置き換えて考える必要がある。気液固系操作において、層内全体で平均した液相の単位質量当りのエネルギー散逸速度 E は、液相に加えられる種々の運動エネルギー源から次式によって与えられる。

$$E = (-dP_l/dz)U_l/(\epsilon_l\rho_l) + U_g g + (-dP_w/dz)U_l/(\epsilon_l\rho_l) \quad (6-1)$$

右辺第1項は粒子層中の液本体流れによって供給される運動エネルギーを表し、 $(-dP_l/dz)$ は層内動圧勾配である。充填層操作における $(-dP_l/dz)$ は、粒子周りの軸方向動圧変化 $\Delta P_d/d_p$ (Table 5-3に表示)に等しい。また、流動層操作における $(-dP_l/dz)$ は、液相が連続相を成しているから(第1章の操作の分類の項参照)、層内の軸方向の全圧力勾配から液相の静水圧頭を補正することによって与えられる。すなわち、

液固流動層に対して、

$$\begin{aligned} (-dP_l/dz) &= (\epsilon_s\rho_s + \epsilon_l\rho_l)g - \rho_l g \\ &= \epsilon_s(\rho_s - \rho_l)g \end{aligned} \quad (6-2)$$

3相流動層に対して、

$$\begin{aligned} (-dP_l/dz) &= (\epsilon_s\rho_s + \epsilon_l\rho_l + \epsilon_g\rho_g)g - \rho_l g \\ &= \{\epsilon_s(\rho_s - \rho_l) - \epsilon_g(\rho_l - \rho_g)\}g \end{aligned} \quad (6-3)$$

Eq. (6-1)の右辺第2項は、気泡の攪乱作用によって液相に供給される運動エネルギーである。また、Eq. (6-1)の右辺第3項は、塔壁面摩擦抵抗に対して供給される運動エネルギーであり、 $(-dP_w/dz)$ は壁面摩擦抵抗による圧力損失である。

Fig. 6-8に液固流動層、液単相流充填層及び液空塔流れのそれぞれに対して、Eq. (6-1)から計算される層平均の E の値を U_l に対して線図として示す。また横軸には液空塔基準のレイノルズ数も併せて示した。ここで各操作においてEq. (6-1)の右辺の1~3項目それぞれの寄与の度合を見ると、液固流動層と充填層の E は第1項目が支配的となっており、気液2相流の場合には、 U_l が約1m/s以下では第2項目が支配的になっている。次に、各操作における E の値の相対的

な関係を見ると、液固流動層における E は、 U_l の増大に対して流動化開始後わずかに増大し最大値を経てやがて減少し、層空隙率が1となる $U_l = U_i$ において液空塔流れの E に一致する。しかし液固流動層の E は対応する d_p 、 U_l の液単相流充填層の E よりも小さい。気液2相流の E は、液固流動層の E と同一オーダーにあることがわかる。一方、ここに示したすべての多層接触装置の E は、液空塔流れの E と比較して数桁大きい。従って、Eq. (6-1) の右辺第3項の値は、粒子層の存在によって液線速度が増大しても、高々数倍程度の増大しか見込めないで、本研究で扱った気液系、液固系及び気液固系操作に対しては、他の2つの項と比較して無視できる。

Figs. 6-9, 6-10 に、液空塔流れ以外の多相接触操作において、本研究で得た k_w を E を用いて相関した結果を示す。これらの図から、全ての多相接触装置におけるシャーウッド数 $Sh_w (= k_w D / D_l)$ は、エネルギー散逸パラメータ $E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l$ 及びシュミット数 $Sc (= \nu_l / D_l)$ を用いて、次式により良好に相関された。

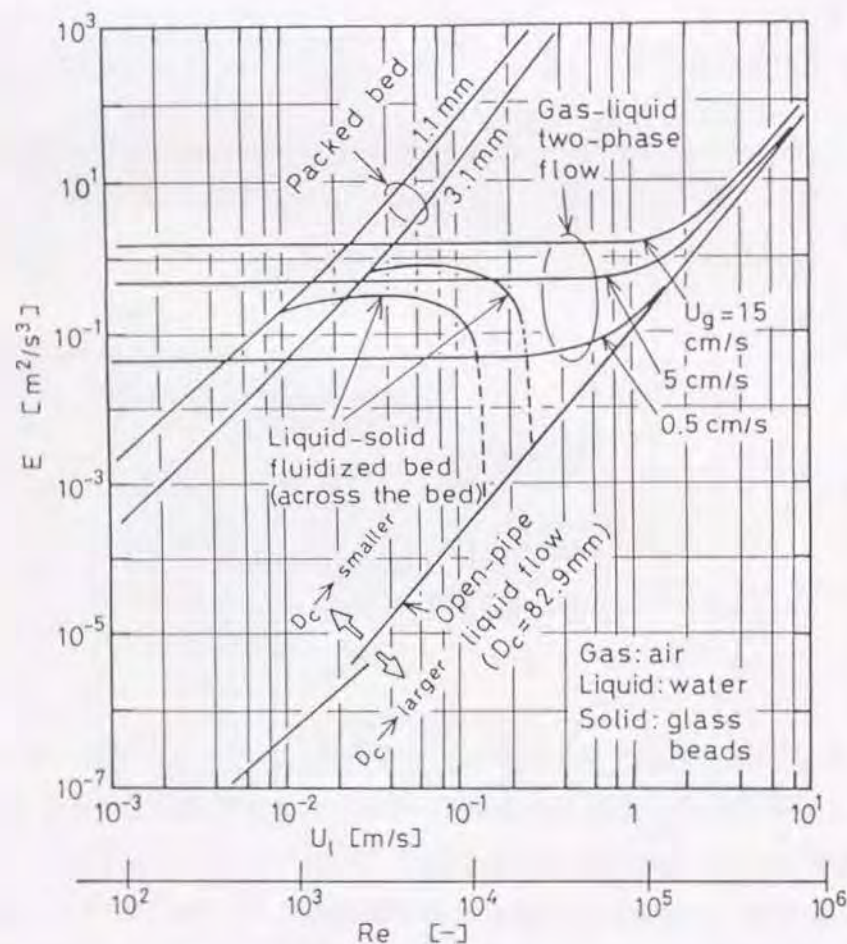


Fig. 6-8 Typical values of E in the column for various flow systems.

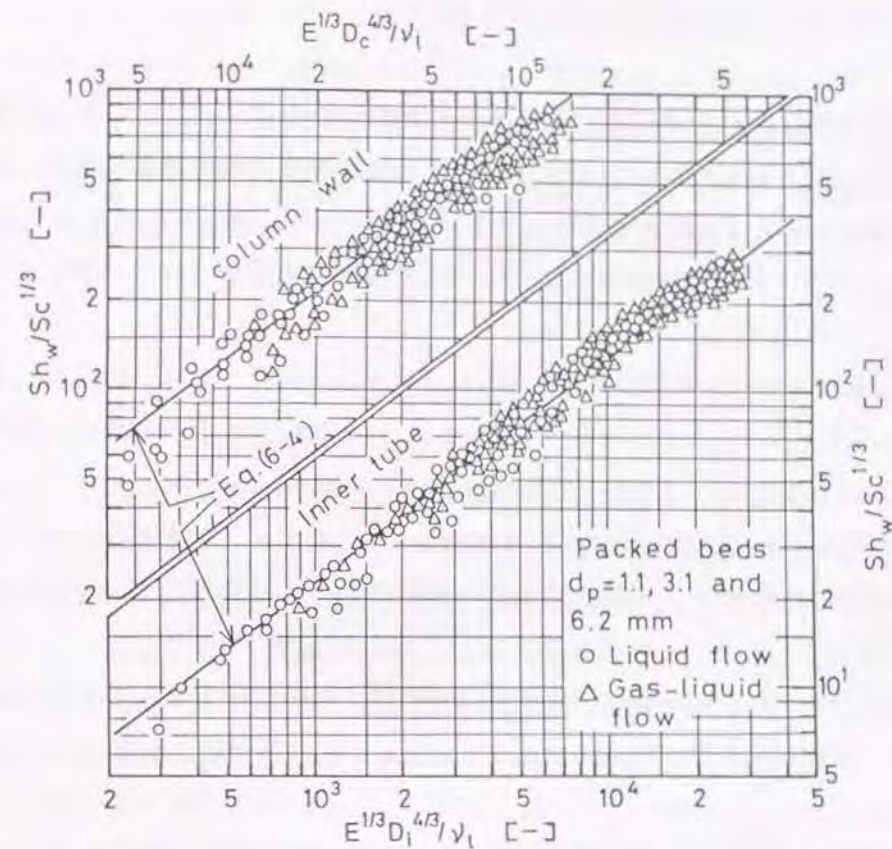


Fig. 6-9 $Sh_w / Sc^{1/3}$ vs. $E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l$ in packed beds.

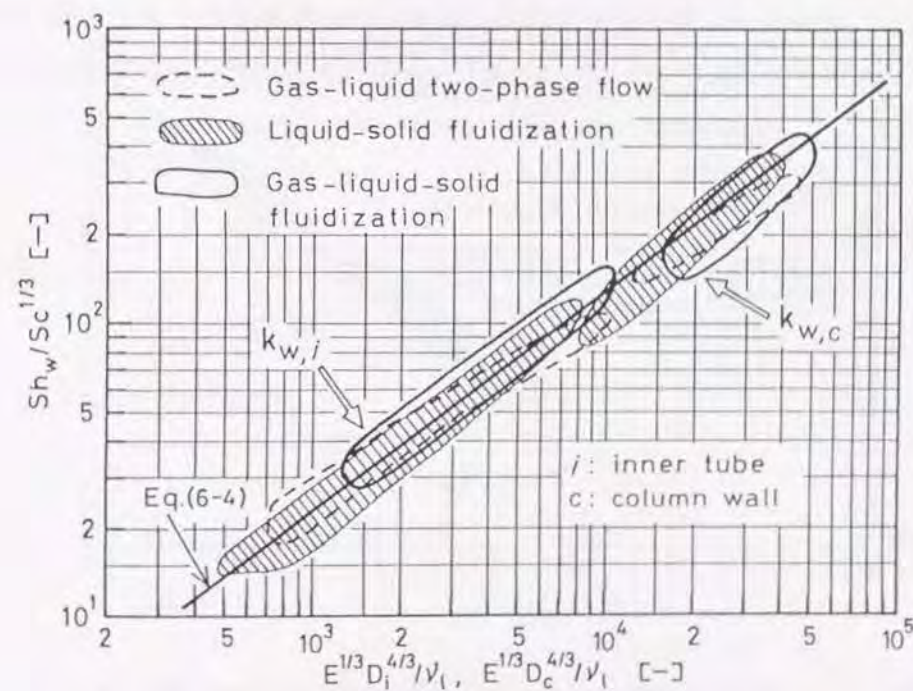


Fig. 6-10 $Sh_w / Sc^{1/3}$ vs. $E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l$ in a gas-liquid two-phase flow and in fluidized beds.

$$Sh_w = 0.13 (E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l)^{0.75} Sc^{1/3} \quad (6-4)$$

但し、 D は物質移動表面の代表長さであり、塔内壁面の場合は $D=D_c$ で、挿入円筒表面の場合は $D=D_i$ である。Eq.(6-4)による k_w の推定値の実験値に対する相対標準偏差は0.21であった。Eq.(6-4)を展開すると、 k_w は D に依存しないことがわかる。Eq.(6-4)を用いて計算した値をFigs.6-3~6-7に示す。広い操作条件にわたって、計算値は実験値とよく一致していることがわかる。

ここで、液空塔流れの k_w の相関に対してEq.(6-4)を適用したところ、計算値は概略一致するが、 Sh_w の $E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l$ に対する依存度がEq.(6-4)の場合よりもやや高くなった。これは円管内乱流場が非等方性であることが一因となっていると考えられる。

次に、 k_w に対する本相関法を既往の液固流動層の k_w のデータに適用し、その妥当性を検討した。種々の幾何学的構造をもつ液固流動層の壁面における物質移動データ[I4,J1,M9]から、 $Sh_w/Sc^{1/3}$ 対 $E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l$ の関係を求め、これをFig.6-11に示した。ここで、装置構造上 D の取り方には種々考えられるが、本結果に準じて、図中に示したものを採用した。なお、諸岡ら[M9]は、物質移動表面の垂直方向長さが15mmと短い場合は、100mm以上の場合と比較して k_w が大きい値をとると報告している。これは、Fig.6-2の所で述べたように、物質移動面の流れ方向長さが短い所では、濃度境界層の未発達領域と考えられるので、このような所で得

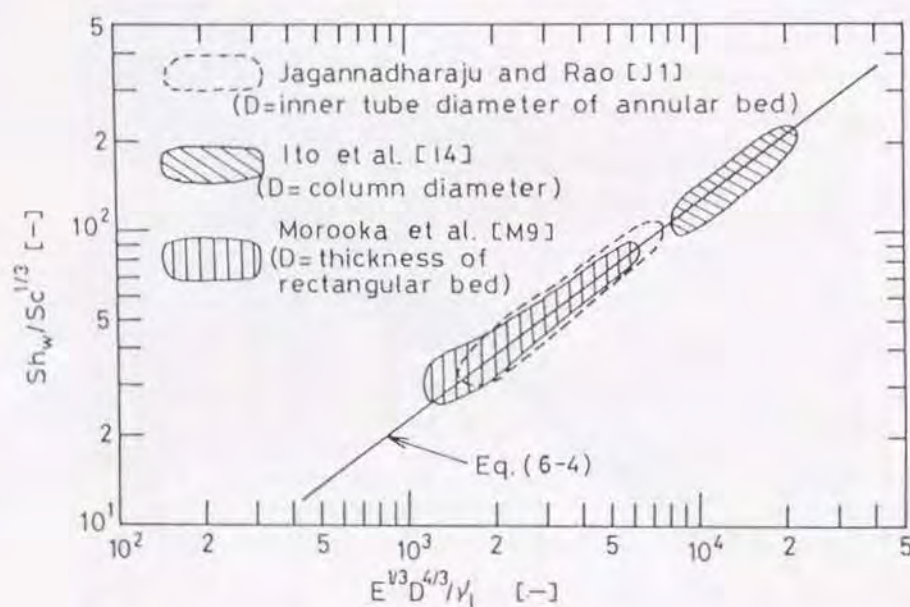


Fig.6-11 Comparison of Eq.(6-4) with the published data on k_w in liquid-solid fluidized beds.

られたデータはプロットから除外した。一方、図中のJaganadharajuら[J1]及び伊藤ら[I4]のデータは、物質移動表面の垂直方向長さが十分に大きく、濃度境界層が完全に発達した場合に対するものと考えてよい。この図から種々の幾何学的構造の流動層の壁面における k_w は、物質移動表面の流れ方向長さが十分に大きければ、Eq.(6-4)によって良好に表されることがわかった。なお、流れ方向寸法が短い場合において、この寸法が壁面移動現象に及ぼす影響については、次章で詳細に検討する。

結 言

3相流動層の壁面液間物質移動係数 k_w を、塔内壁面及び塔中心軸上に挿入した種々の直径の円筒表面において測定した。さらに、3相流動層と類似の装置形態の充填層や気液2相流等における k_w も同様に測定し、これら各種多相接触装置の k_w を比較検討した結果、以下の結論を得た。

(1) 3相流動層を始めとした気液、液固及び気液固系操作における k_w は、層入口近傍を除き軸方向にはほぼ一様であることがわかった。さらに塔壁面と挿入円筒表面の k_w は共に同じ値を取ることがわかった。

(2) 気液系、液固系及び気液固系等のすべての多相接触装置の k_w は、その操作を行うのに必要な外部から加えられる運動エネルギーの総和と密接な関係があることがわり、このことより、気液系、液固系及び気液固系操作における塔内壁面及び挿入円筒表面の k_w は共に、液単位質量当たりのエネルギー散逸速度を用いて、Eq.(6-4)によって良好に相関された。

第 3 編

気液固 3 相流動層における伝熱

緒 言

3 相流動層を化学反応器として使用する場合、層内の温度を適正に制御することは、目的生成物の収率向上や装置の安全操作のために必要不可欠である。通常、伝熱は塔壁面あるいは層内に挿入した熱交換体と層の間で行われるが、所望の温度を得るためには伝熱面積及び温度推進力のある程度大きくしなければならない。従って、層内には、反応熱の大きさ、混合特性の他に、操作条件や伝熱方法等に依存して、温度分布が形成される。この層内温度分布の予測は、反応器設計において不可欠であるが、そのためには、伝熱面の壁面伝熱係数だけでなく、層本体中における軸方向及び半径方向の熱移動に関する知見が必要となってくる。

3 相流動層の伝熱に関する研究は、第 1 章で概括したように活発に行われてきたが、その大部分は熱交換体表面積を小さくするか温度推進力を小さくするかによって、層内に温度分布をほとんど生じさせない条件下で、壁面層間の伝熱係数を測定している。また、Chiuら[C2]のように層内半径方向の温度分布の存在を確認している報告もあるが、これについての定量的な検討はなされていない。したがって、本研究ではより実用的な伝熱装置の設計の立場から、伝熱面積及び伝熱推進力共に大きく取り、壁面伝熱挙動のみならず、層本体中の伝熱挙動の両者を定量的に解明して行くことを目的とした。

ところで、3 相流動層の伝熱現象を解明する上で、液固流動層や気液 2 相流の伝熱に関する知見は重要となる。なぜならば、3 相流動層は液固流動層に気体を導入したものとして、あるいは気液 2 相流に固体を導入したものとして位置付けることができるからである。そこで以下のように順を追って 3 相流動層の伝熱特性を液固流動層や気液 2 相流の伝熱特性と対比させながら実験的に検討した。

(1) 壁面流動層間全体に対する総括伝熱係数 h_o を求め、これを操作条件から推定できる相関式を作成した。

(2) 全伝熱抵抗が層本体内抵抗と壁面抵抗とから成るとする直列伝熱抵抗モデルを用いて、半径方向の有効熱伝導度 k_{er} と見かけの壁面伝熱係数 h_w を求め、これらを別々に調べた。これらのうち、 k_{er} については層内の流動特性との関連性から検討した。 h_w については、第 6 章で検討した壁面液間物質移動現象との相似性を調べ、それに基づいて h_w の相関式を得た。

(3) (1) 及び (2) の結果から、層内伝熱抵抗の全伝熱抵抗に占める割合について検討した。

(4) h_w の本研究結果と既往の伝熱データを総合して、伝熱体の幾何学的因子が h_w に及ぼす影響について検討した。

7. 1 実験装置および操作

実験に使用した装置のうち伝熱部本体の概要をFig. 7-1に示す。気液の流れ系は基本的には第2～6章で示したものと同様である。塔本体は内径95.6mm、厚さ3mmの黄銅管であり、下から順に整流部(長さ0.2m)、伝熱部(同0.8m)および非加熱流動層部(同1.34m)が連結されている。伝熱部には内径142mmの鋼鉄製スチームジャケットを取り付け、これにはほぼ大気圧のスチーム(温度約100℃)を導入した。ジャケット内の伝熱壁面上での凝縮液による冷却作用を防ぎ、壁温をできるだけ均一に保つために、スチームジャケットの中間の高さにおいて、ジャケットを上下2段に仕切り、2区画それぞれにスチームを上部から供給し凝縮液と余剰のスチームを下部から排出できるようにした。さらに塔本体各部の外壁面は周囲との熱交換をできるだけ少なくするために断熱材で覆った。このように伝熱部の長さを塔経に対してかなり大きく取った。

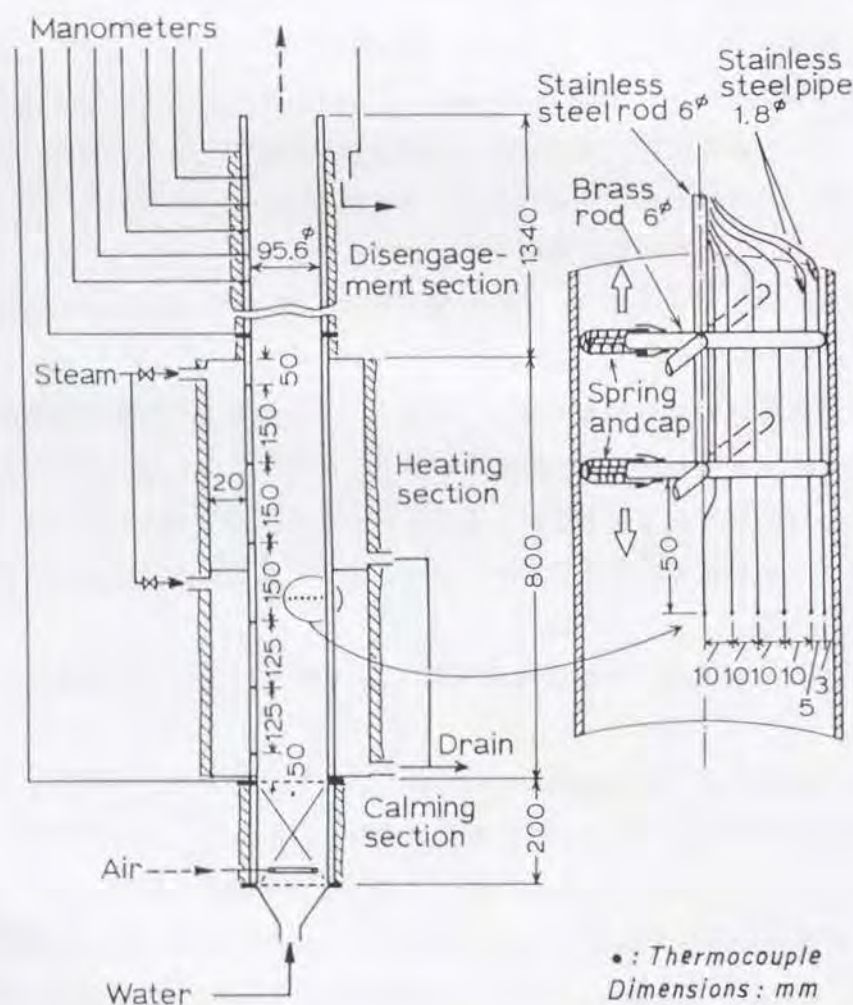


Fig. 7-1 Schematic diagram of experimental apparatus.

塔本体各部における温度は熱電対を用いて測定した。温度の測定点は図に示したように、層内半径方向に6点、伝熱部壁面の軸方向に6点、及び整流部内の1点の合計13点である。半径方向の温度分布測定用の熱電対は、半径方向位置が0, 10, 20, 30, 40および45mmの6点に櫛状に配列し、これを上下に移動させることによって熱電対先端を伝熱部の任意の高さに設置することができるようにした。壁温測定用の熱電対は、伝熱部入口からの距離が50, 175, 300, 450, 600および750mmの6点に固定した。

液体には水道水を使用し、塔本体を通して塔頂から排出された液を貯水槽に戻し新鮮な水道水と混合することによって、液温を313～333Kの範囲で変動幅±0.2K以内の一定温度に調節した。気体には空気を使用し、これを液貯水槽中に設置した飽和器を通し、液温まで加温すると同時に水蒸気で飽和させて塔内に送入した。固体には篩分けした6種類の大きさのガラス球、2種類の大きさの活性炭、及び1種類の無孔性アルミナ球を使用した。粒子径範囲は0.61～6.9mm、また粒子密度範囲は1330～3550kg/m³に及んでいる。これらの粒子を用いた場合の操作条件及び粒子の特性値をTable 7-1に示す。

7. 2 解析

7. 2. 1 総括伝熱係数 h_o の算出

後の結果のところで示すが、3相流動層の層内温度の軸方向分布は、気泡によって引き起こされる循環乱流流動や攪乱作用による軸方向混合の影響を大きく受ける。このような場合、伝熱部入口から出口までの層内温度分布の解析に押し出し流れモデルは適用できない。そこで、まず軸方向の混合現象を考慮して、装置内の流れ系を表す最も一般的な混合拡散モデルを用いて、層内温度を解析し総括伝熱係数 h_o を求めた。

定常状態において、層内半径方向の気液の流速分布及び温度分布が一様とする仮定の下に、層内軸方向距離 z の微小区間に対して熱収支をとると次式を得る。

$$k_{ez} \frac{d^2 T_m}{dz^2} - (G_l C_{pl} + G_g C_{pg}^*) \frac{dT_m}{dz} + \frac{4 h_o}{D_c} (T_w - T_m) = 0 \quad (7-1)$$

境界条件は次の2式で与えられる。

$$z = 0 ; -k_{ez} (dT_m/dz) = (G_l C_{pl} + G_g C_{pg}^*) (T_0 - T_m) \quad (7-2a)$$

$$z = L ; dT_m/dz = 0 \quad (7-2b)$$

Table 7-1 Properties of fluidized particles and experimental conditions

Fluidized material	$d_p \times 10^3$ [m]	$\rho_s \times 10^3$ [kg/m ³]	$U_x \times 10^2$ [m/s]	$U_g \times 10^2$ [m/s]	n	$U_i \times 10^2$ [m/s]
Glass beads (G.B.)	0.61		0.8 ~ 6.0	0.39 ~ 12.0	2.36	8.0
	1.1		1.5 ~ 15.5	0.46 ~ 17.0	2.47	16.0
	2.2	2.50	3.0 ~ 20.0	0.46 ~ 20.0	2.39	24.5
	3.1		4.0 ~ 23.0	0.46 ~ 25.0	2.39	30.0
	4.8		6.0 ~ 26.0	0.46 ~ 25.0	2.39	37.0
	6.9		6.0 ~ 25.0	0.46 ~ 25.0	2.39	44.5
Activated carbon	1.8*		1.2 ~ 5.5	0.30 ~ 2.9	2.30	8.5
beads (A.C.B.)	3.9**	1.33***	1.6 ~ 11.0	0.40 ~ 3.9	2.39	13.0
Alumina beads (A.B.)	2.0	3.55	7.0 ~ 25.0	0.46 ~ 14.0	2.39	35.0

* Sphere

** Rounded off cylinder (nearly spherical)

*** Wetted apparent density

ここで、 C_{pg}^* は気相中における水蒸気の蒸発、凝縮を伴う潜熱の移動の効果を含んだ見かけの気相の比熱である。なお、 $G_g C_{pg}^*$ の値は本実験条件下では、ほとんどの場合において $G_l C_{pl}$ に比べて数%程度であった。 G_l および G_g はそれぞれ液相及び気相の質量流速である。

T_w は壁面温度であり、6点の測定値に対する平均値である。ここで、6点の壁面温度のうち、最下端の値は他に比べて約2~5 K低くなったが、他の5点はほぼ±1 Kの範囲内で一致していた。 T_m は層内のある高さ z での半径方向距離 r における局所の温度 T の断面平均温度であり、半径方向の6点で得た温度分布から次式を用いて求めた。

$$T_m = \frac{2}{R_w^2} \int_0^{R_w} T r dr \quad (7-3)$$

実際に得られた T の半径方向分布は、層本体中で放物線型となり壁面において T_w との間に不連続性、すなわち壁境膜で急激な温度上昇が生じた (Figs. 7-7~7-8 参照)。このことは層本体中においても伝熱抵抗が存在していることを示唆しているが、この解析は次節で述べる。

k_{ez} は軸方向の有効熱伝導度であり液相及び固相の混合による伝熱の寄与を表しており、次式によって与えられる。

$$k_{ez} = \rho_l C_{pl} \epsilon_l E_{zl} + \rho_s C_{ps} \epsilon_s E_{zs} \quad (7-4)$$

なお、Eq. (7-4) で得られる k_{ez} に対して、固液相を通しての伝導による伝熱、及び気相の混合拡散による伝熱は無視できる。ここで、 E_{zl} および E_{zs} はそれぞれ液相及び固相の軸方向混合拡散係数である。3相流動層の E_{zl} の値は、第1章で述べたように詳細な研究データがあるが、 E_{zs} に関してはきわめて少ない。しかし3相流動層の E_{zs} は、その挙動がスラリー気泡塔のそれに等しいとすれば、第2章の結果より低ガス流速域を除いて E_{zl} にほぼ等しいとおける。従って、以下の伝熱実験データの解析では、 E_{zs} は E_{zl} と等しいとおき、次式によって k_{ez} の値を推定した。

$$k_{ez} = (\rho_l \epsilon_l C_{pl} + \rho_s \epsilon_s C_{ps}) E_{zl} \quad (7-5)$$

3相流動層における E_{zl} の値は、室山ら [M13] の相関式 (Eqs. (1-4), (1-5)) によった。また気液2相流における E_{zl} の値は、加藤ら [K3] の気泡塔における E_{zl} の相関式によった。

ここで3相流動層の h_0 を算出するに当たって、 k_{ez} の推定値の不正確さに起因する h_0 の誤差は比較的小さかった。

境界条件Eqs.(7-2a,b)のもとで、Eq.(7-1)の解は次式となる。

$$\frac{T_w - T_m}{T_w - T_0} = \frac{2[(1 + \alpha) \exp\{\alpha \beta + \beta(1 - \alpha)z/L\} - (1 - \alpha) \exp\{-\alpha \beta + \beta(1 + \alpha)z/L\}]}{(1 + \alpha)^2 \exp(\alpha \beta) - (1 - \alpha)^2 \exp(-\alpha \beta)} \quad (7-6)$$

ここで、

$$\alpha = [1 + 8 k_{ez} h_0 / (R_w (G_l C_{pl} + G_g C_{pg}^*))^2]^{1/2} \quad (7-7)$$

$$\beta = (G_l C_{pl} + G_g C_{pg}^*) L / (2 k_{ez}) \quad (7-8)$$

伝熱部出口($z = L$)においては、Eq.(7-6)は次式となる。

$$\frac{T_w - T_{m/z=L}}{T_w - T_0} = \frac{4 \alpha \exp(\beta)}{(1 + \alpha)^2 \exp(\alpha \beta) - (1 - \alpha)^2 \exp(-\alpha \beta)} \quad (7-9)$$

h_0 の値は、Eq.(7-9)から計算される T_m の値が伝熱部出口において測定された T_m に一致するように試行錯誤法によって求め、得られた h_0 の値をEq.(7-6)に代入して T_m の軸方向分布を算出し、実測値との一致性を見た。本来 h_0 の算出には T_m の軸方向分布に対してEq.(7-6)を適用すべきであるが、操作条件によっては(特に流動化開始液速度付近の操作領域)、層内温度の発達の間走区間がかなり大きくなり、Eq.(7-6)の適用が事実上不可能な場合があった。そのため、本研究では一律にEq.(7-9)を用いる方法を取った。

7. 2. 2 半径方向の有効熱伝導度 k_{er} と見かけの壁面伝熱係数 h_w の算出

本実験系においては、3相流動層の層内温度の半径方向分布は層本体中で放物線型となり、かつ壁面近傍で急激な温度勾配が生じる。このような温度の半径方向分布の解析には、壁境膜と層本体の両方に伝熱抵抗があり、それらが直列に作用する直列伝熱抵抗モデルの使用が適当と考えられる。

そこで、7. 2. 1で述べた軸方向の熱伝導の影響に加えて、半径方向の熱伝導の影響も考慮に入れて、層内の温度分布の解析をする。まず以下の仮定1)-3)を設ける。

仮定 1) 層内局所における気液固各相間の温度差はない。

2) 気相及び液相の流速分布は半径方向に一樣である。従って、気液固各相のホールディングの半径方向分布も一樣である。

3) 軸方向及び半径方向の有効熱伝導度 k_{ez} および k_{er} は層内全域で一定である。

仮定1)-3)のもとに、定常状態における層内微小部分の熱収支をとると次式が得られる。

$$(G_l C_{pl} + G_g C_{pg}^*) \frac{\partial T}{\partial z} = k_{er} \left(\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} \right) + k_{ez} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \quad (7-10)$$

境界条件は以下の式で与えられる。

$$z = 0; \quad -k_{ez} (\partial T / \partial z) = (G_l C_{pl} + G_g C_{pg}^*) (T_0 - T) \quad (7-11a)$$

$$z = L; \quad \partial T / \partial z = 0 \quad (7-11b)$$

$$r = R_w; \quad k_{er} (\partial T / \partial r) = h_w (T_w - T) \quad (7-11c)$$

以上の境界条件、及び壁温 T_w が z 方向に一樣である条件において、Eq.(7-10)の解析解は若尾ら[W1]により次式で与えられる。

$$\frac{T_w - T}{T_w - T_0} = \frac{4}{R_w} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{h J_0(r \xi_i)}{(h^2 + \xi_i^2) J_0(R_w \xi_i)} \cdot F \quad (7-12)$$

$$F = \frac{(1 + A_i) \exp\left\{\frac{(1 - A_i)z}{2 k \delta}\right\} - (1 - A_i) \exp\left\{\frac{(1 + A_i)z - 2 A_i L}{2 k \delta}\right\}}{(1 + A_i)^2 - (1 - A_i)^2 \exp\left\{\frac{-A_i L}{k \delta}\right\}} \quad (7-13)$$

ここで、

$$A_i = \sqrt{1 + 4 k^2 \xi_i^2 \delta}, \quad h = h_w / k_{er} \\ k = k_{er} / (G_l C_{pl} + G_g C_{pg}^*), \quad \delta = k_{ez} / k_{er} \quad (7-14a-14d)$$

また、 ξ_i は次式で示される超越方程式の i 番目の正根である。

$$h J_0(R_w \xi_i) = \xi_i J_1(R_w \xi_i) \quad (7-15)$$

一方、液固流動層の場合のように軸方向の熱伝導の影響がない場合(押し出し流れを仮定；Eq.(7-10)において $k_{ez}=0$)の解析解は、境界条件としてEq.(7-11c)と

$$z = 0; \quad T = T_0 \quad (7-16)$$

の2つを用いて、八田ら[H5]により次式で与えられている。

$$\frac{T_w - T}{T_w - T_0} = \frac{2}{R_w} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{h J_0(r \xi_i) \exp(-k \xi_i^2 z)}{(h^2 + \xi_i^2) J_0(R_w \xi_i)} \quad (7-17)$$

ところで、 z が大きい場合、Eq.(7-12)あるいはEq.(7-17)の右辺の無限級数和は急速に収束するので、この第1項のみを近似解として用いることができるようになる。この場合、十分に大きい z に対して、塔中心部で得られた無次元温度 $(T_w - T)/(T_w - T_0)$ に対する任意の半径方向距離 r で得られた無次元温度の比をとると、次式が得られる。

$$(T_w - T_{/r=r}) / (T_w - T_{/r=0}) = J_0(r \xi_1) \quad (7-18)$$

Eq.(7-18)を実測した半径方向温度分布に適用すれば、各 r で得られた温度に対応する ξ_1 が得られ、それらを平均すれば断面平均の ξ_1 が求められる。次に、得られた ξ_1 を元の解析解の第1項のみで近似した式に代入して計算した値が、実測した半径方向の温度分布と一致するように k_{er} および h_w を求める。

しかし、本実験系の場合、伝熱部長さ L は解析解として第1項近似による式が適用できるほど十分には大きくなく、Eq.(7-12)あるいはEq.(7-17)の右辺の級数和がほぼ完全に収束するには第4項目までの和を必要とした。なお、級数和の項数をこれ以上大きくしても解析精度はあまり向上しない。従って、半径方向の温度分布の解析においては、一律に解析解の4項目までの級数和を解として用いた。これを実測した半径方向の6点で得られた温度分布に適用し、温度分布の計算値と実測値との偏差の2乗総和が最小となるように、非線形最小2乗法(Marquardt法)[M1,H3]により k_{er} 及び h_w を求めた。なお、最小2乗法における k_{er} 、 h_w の初期値には先に述べた第1項近似法を用いて得た値を使用した。また、 k_{ez} の値は7.2.1と同様にして求めた。

7.3 実験結果および考察

7.3.1 総括伝熱係数 h_o の挙動と相関

(a) 層平均温度 T_m の軸方向分布

Fig.7-2に、 T_m を無次元化した値 $(T_w - T_m)/(T_w - T_0)$ の軸方向分布を示す。3相流動層の層内温度の軸方向分布は、層入口付近で飛躍があり(無次元温度の値は1の値から急激に減少し)、層本体中では z の増大と共に徐々に増大する(無次元温度は徐々に減少する)。このことは、3相流動層における軸方向の熱移動に液相及び固相の混合拡散による熱移動が大きく寄与していることを示している。そこで、この軸方向温度分布に軸方向混合拡散モデルを適用して

得た計算値をFig.7-2にプロットしたところ(図中に実線で示した)、モデルによる計算値は実験値とよく一致した。一方、軸方向の伝導伝熱の影響を考慮にいない押し出し流れモデルによる計算値(破線で図示)は、液固流動層においては実測値とはほぼ一致するが、3相流動層の場合には良い一致を示さなかった。

また、気液2相流の T_m の軸方向分布に対しても、軸方向混合拡散モデルが適用できた。

そこで、以下に示す h_o の説明においては、気液2相流及び3相流動層の h_o は、混合拡散モデルによって、また、液固流動層に対しては、押し出し流れモデルによって、それぞれ得た値を使用した。

(b) 気液2相流および液固流動層における h_o の挙動と相関

Fig.7-3に気液2相流における総括伝熱係数 h_{o2}' を示す。また液回分式気泡塔において、非定常伝熱による実験を行って得た h_{o2}' も同時に示した。気液系の h_{o2}' は液空塔速度 U_l の影響をほとんど受けず、ガス空塔速度 U_g の0.22-0.25乗に比例して増大する。また、比較のために示したFairら[F1]およびDeckwer[D6]の気泡塔の壁面伝熱係数 h_w に関する相関式からの計算値ともよい一致を示している。

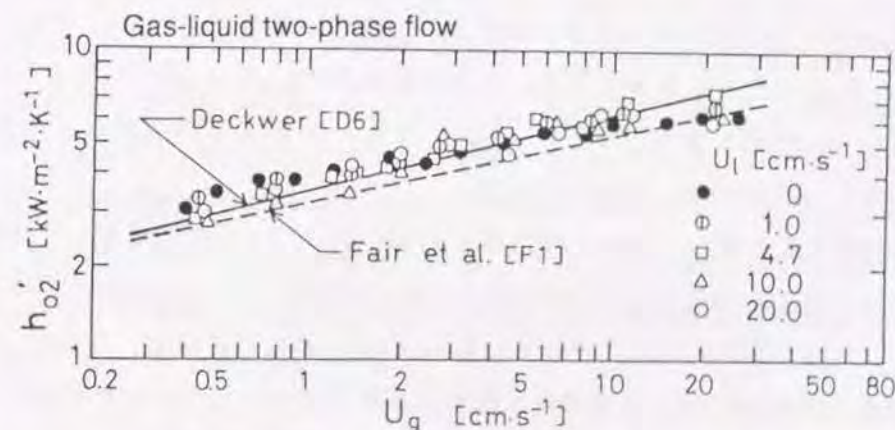


Fig.7-3 Overall heat transfer coefficient in a gas-liquid two-phase upflow.

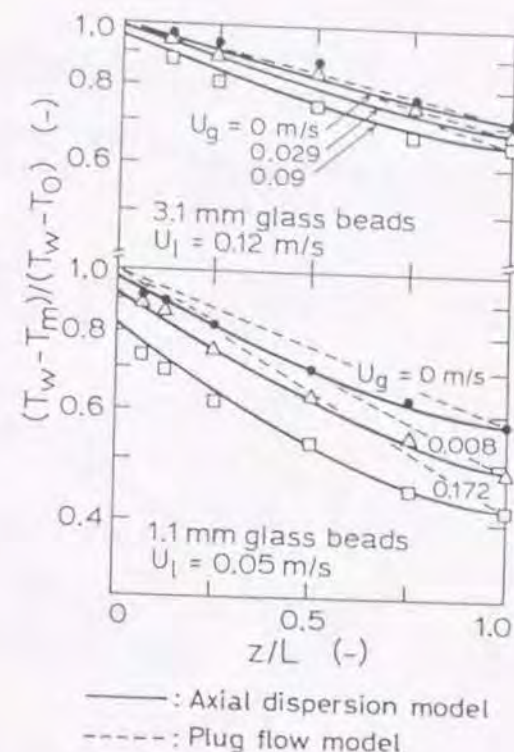


Fig.7-2 Axial distribution of mean bed temperature.

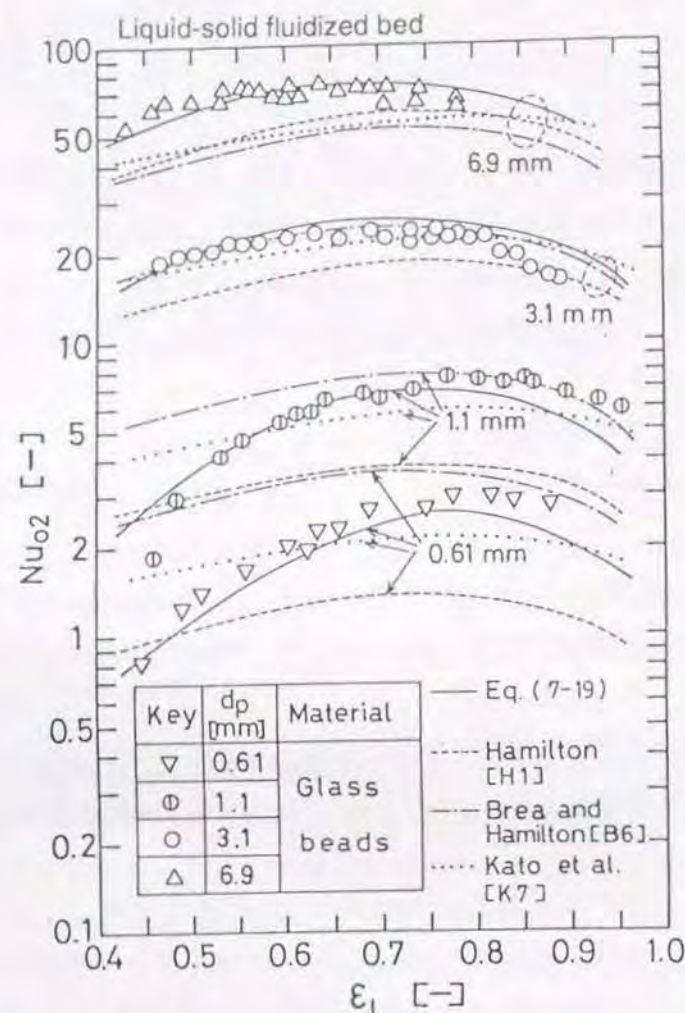


Fig. 7-4 Variation of Nu_{o2} in terms of overall coefficient with ϵ_l in a liquid-solid fluidized bed.

Fig. 7-4に、液固流動層における総括伝熱係数 h_{o2} を用いたヌッセルト数 $Nu_{o2} (=h_{o2} d_p / \lambda_l)$ 対液ホールドアップ ϵ_l の関係を示す。液固流動層の Nu_{o2} は ϵ_l に対して上に凸の関係で表され、 $\epsilon_l = 0.6 \sim 0.8$ の間で最大値をとる。 Nu_{o2} (すなわち h_{o2}) が最大値をとる ϵ_l の値は、流動化粒子の直径 d_p が減少すると共に増大する。

ここで、液固流動層の h_{o2} に関する既往の結果 [H1, B6, K7] と本実験結果とを比較検討するために、Hamilton [H1]、Breaら [B6] および Katoら [K7] の提出した h_{o2} の相関式を本実験条件に適用して、 Nu_{o2} 対 ϵ_l の関係を求め、それを Fig. 7-4 に示した。その結果、 $d_p \geq 3.1$ mm の直径の大きい粒子を用いた場合には、本実験値と既往の相関式による値とは比較的良好に一致する。しかし、 $d_p \leq 1.1$ mm の場合には各相関式による h_o の計算値の間の偏差が増大し、また、これらの計算値と本実験値とはよい一致を示さない。この原因として、各研究者ごとに使用した装

置寸法や伝熱方式の違いにより層本体中の伝熱抵抗が違ったものとなり、これが h_o の値に影響を及ぼしたことが考えられる。

液固流動層の h_o の本実験結果を j_H 因子対修正レイノルズ数の関係で整理したところ次式を得た。

$$(d_p/D_c)^{-0.935} [Re_l/(1-\epsilon_l)] \leq 1.81 \times 10^4 \text{ に対して}$$

$$j_{Ho2} = 0.04 \quad (7-19a)$$

$$(d_p/D_c)^{-0.935} [Re_l/(1-\epsilon_l)] \geq 1.81 \times 10^4 \text{ に対して}$$

$$j_{Ho2} = 3.6 (d_p/D_c)^{0.43} [Re_l/(1-\epsilon_l)]^{-0.46} \quad (7-19b)$$

ここで、 $j_{Ho2} = h_{o2} / (\rho_l C_{pl} U_l) \cdot Pr^{2/3}$ および $Re_l = \rho_l U_l d_p / \mu_l$ である。Eq. (7-19) を用いて Nu_{o2} を計算し Fig. 7-4 に実線で示した。Eq. (7-19) は実験値をよく表していることがわかる。 h_{o2} の Eq. (7-19) による計算値の実験値に対する相対標準偏差は 13% であった。

(c) 3相流動層における h_o の挙動と相関

Figs. 7-5, 7-6 に 3 相流動層の総括伝熱係数 h_{o3} の結果を示す。ここで、Fig. 7-5 にはガラス球を用いた場合で種々の d_p に対して、また、Fig. 7-6 には d_p をほぼ同じにして粒子密度 ρ_s を変えて示してある。さらに、これらの図中には比較のために、液固流動層の実験データ及び Deckwer [D6] の式から求めた気泡塔の h_w をそれぞれ示した。これらの図から、3 相流動層の h_o は U_g の増大と共に同じ U_l の液固流動相の h_o の値から徐々に増大することがわかる。この h_{o3} が U_g に対して増大する率は、 d_p が同じ場合、 U_l の減少と共に増大した。 d_p 及び粒子密度 ρ_s の影響をみると、 d_p または ρ_s が大きくなるほど h_{o3} の U_l による変化は小さくなり、また、 h_{o3} の U_g 依存性も低下している。さらに、 d_p 、 U_l 、 ρ_s の値がここで調べたいいずれの場合であっても、 h_{o3} は高 U_g 域で気泡塔の h_w に一致するようになる。

以上のように、3 相流動層の h_o を液固流動層及び気液 2 相流の h_o と比較しながら総合的に検討した結果、3 相流動層の h_o 対液固流動層の h_o の比 h_{o3}/h_{o2} は、気液の流速比 U_g/U_l 、粒子と液との密度差と液密度との比 $(\rho_s - \rho_l)/\rho_l$ および粒子径と塔径との比 d_p/D_c を用いて、次式によって良好に表すことができた。

$$h_{o3}/h_{o2} = 1.0 + 0.0413 (U_g/U_l)^{0.30} [(d_p/D_c)(\rho_s - \rho_l)/\rho_l]^{0.61} \quad (7-20)$$

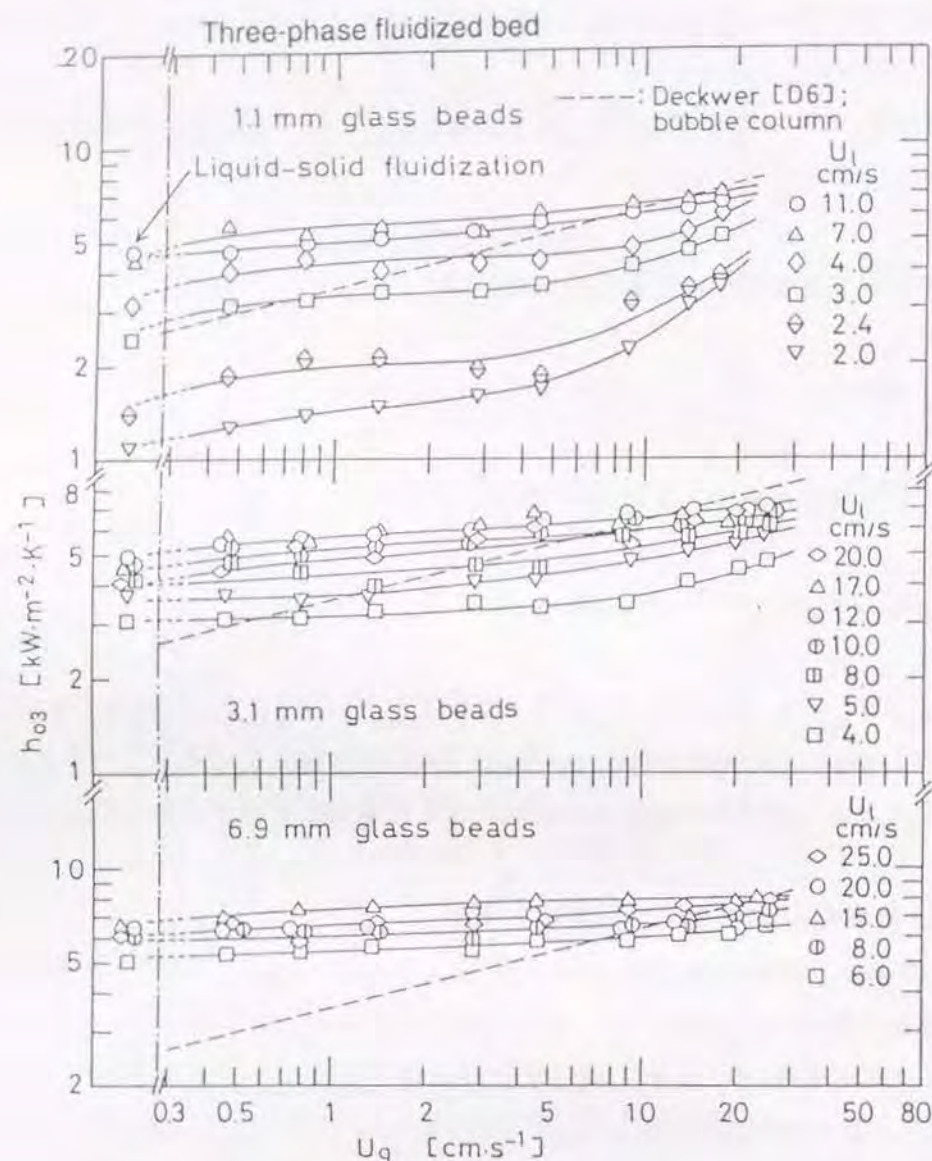


Fig. 7-5 Overall heat transfer coefficient in a three-phase fluidized bed; effect of particle diameter.

ここで、 h_{o2} はEq. (7-19)によって推定できる。3相流動層の h_o をEqs. (7-19), (7-20)を用いて推定した値の実験値に対する相対標準偏差は約10%であった。

ところで、Eq. (7-19)およびEq. (7-20)で示した h_{o2} および h_{o3} の相関式には D_c の項が入っている。これによると、 $h_{o2} \propto D_c^{-0.43}$ 、 $h_{o3}/h_{o2} \propto D_c^{-0.61}$ だから $h_{o3} \propto D_c^{-1.04}$ となる。しかし、本実験では $D_c=95.6\text{mm}$ の場合しか検討していないので、 D_c の h_{o3} に対する影響は不正確といわざるを得ない。しかも、実験システムの幾何学的寸法によって、得られた h_o に対する層内伝熱抵抗の影響が異なるため、 h_o に関して既往の研究のデータと比較検討するこ

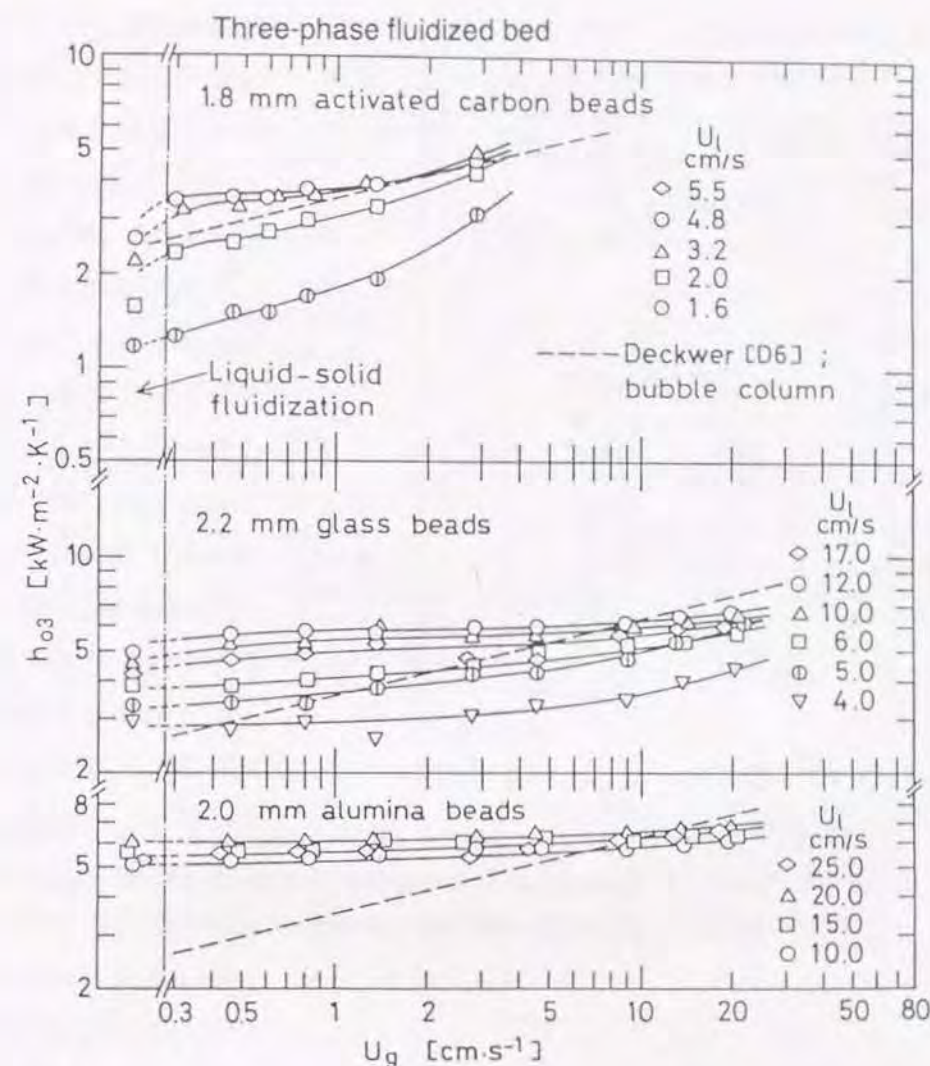


Fig. 7-6 Overall heat transfer coefficient in a three-phase fluidized bed; effect of particle density.

とはあまり意味がない。また、3相流動層の伝熱現象の解明のためには、壁面伝熱現象と層本体内部における伝熱現象に関する知見を別々に得る必要がある。

7. 3. 2 半径方向の有効熱伝導度 k_{er} と見かけの壁面伝熱係数 h_w の挙動

(a) 半径方向の温度分布

Fig. 7-7に、3相流動層において、種々の伝熱部高さ z で得た半径方向温度分布の実験値を無次元化した値、及びそれに直列伝熱抵抗モデルを適用して得られた温度分布の計算値と、そのときに得られた k_{er} および h_w の最適値の組合せを示す。この図から、3相流動層における

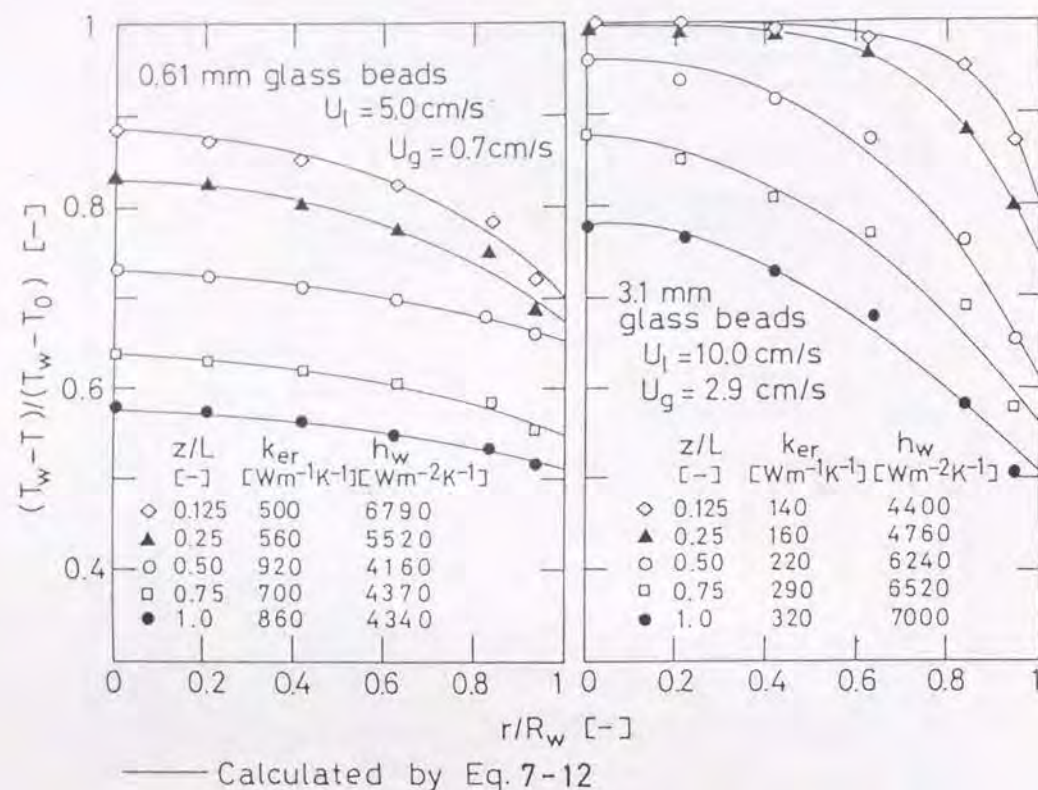


Fig. 7-7 Radial temperature distribution and estimation of heat transfer parameters at various axial positions in a three-phase fluidized bed based on the series thermal resistance model.

層内温度の半径方向分布は層本体中で緩やかな放物線形分布を示し、その外挿値は、壁面において T_w と一致せず不連続となっている。このことは、伝熱抵抗が層本体中及び壁面近傍の両方に存在していることを示している。一方、直列伝熱抵抗モデルによる温度分布の計算値は、実験値をよく説明している。しかし、小粒子を用い最小流動化速度に近い U_l においては、層内温度分布の発達がきわめて不十分であり、本伝熱モデルによっても半径方向温度分布は精度良く表されない場合もあった。伝熱モデルによって得られた k_{er} および h_w の値は、伝熱部位置が $z/L < 0.5$ では z に依存して変化するが、 $z/L \geq 0.5$ では z に依存せずほぼ一様な値となる。この様に k_{er} 及び h_w が z に依存する原因としては、 $z/L < 0.5$ の領域では熱流束が塔中心部まで達せず層内温度の半径方向分布が不完全発達域となっていること、及びこの領域が流動層の入口領域を含んでいることから、流動状態が過渡的に変化する領域にもなってことなどが考えられる。そこで、以後の結果および考察で使った k_{er} および h_w は、層内の半径方向温度分布が最も発達している伝熱部出口 ($z=0.8\text{m}$) において得られた値を採用した。

Fig. 7-8 に、伝熱部出口 ($z=0.8\text{m}$) で得た 3 相流動層における半径方向の温度分布に及ぼす U_g の影響を示す。小粒子を用いた場合 (図において 0.61mm ガラス球)、少量の通気によって層内温度は大きく上昇し (図における無次元温度は減少)、かつ半径方向の温度勾配も減少する。これに対応して k_{er} および h_w 共に大きく増大した。次に大粒子を用いた場合 (図において 3.1mm ガラス球)、低 U_g 域では半径方向の温度勾配は液固流動層の場合とほぼ同じであり、これに対応して k_{er} もほとんど変化しない。しかし、 U_g を増大させると ($U_g \geq 9\text{cm/s}$)、層内温度は上昇し、半径方向の温度勾配は大きく減少する。これに伴い、 k_{er} は大きく増大した。一方、大粒子を用いた場合、 h_w は U_g の増大と共に漸増した。

以上のことから、半径方向の温度勾配は k_{er} と密接な関係にあり、後述するように半径方向の伝熱現象を k_{er} を用いて定量的に捉えることができる。

(b) 気液 2 相流および液固流動層における k_{er} の挙動

気液 2 相流では混合が活発に起こっており、流動層操作と比較して半径方向の温度分布は均一で得られた k_{er} も高い値であった。このことから、気液 2 相流における本体中の伝熱抵抗は、考慮しなくてもよいと言える。

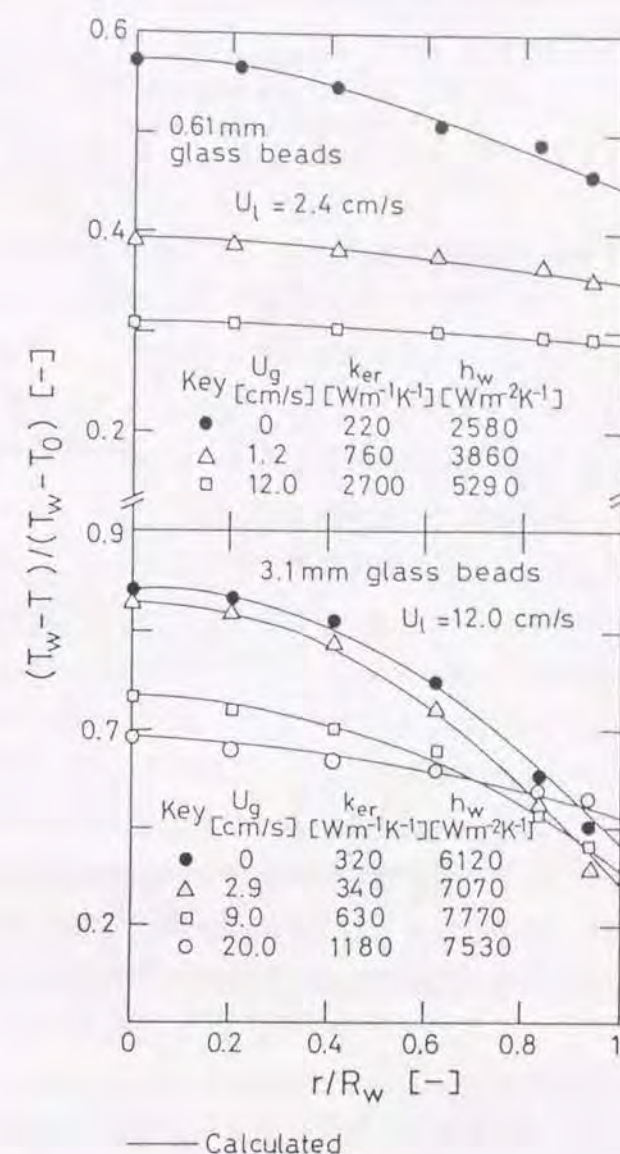


Fig. 7-8 Effect of U_g on radial temperature distribution at the exit of heat transfer section.

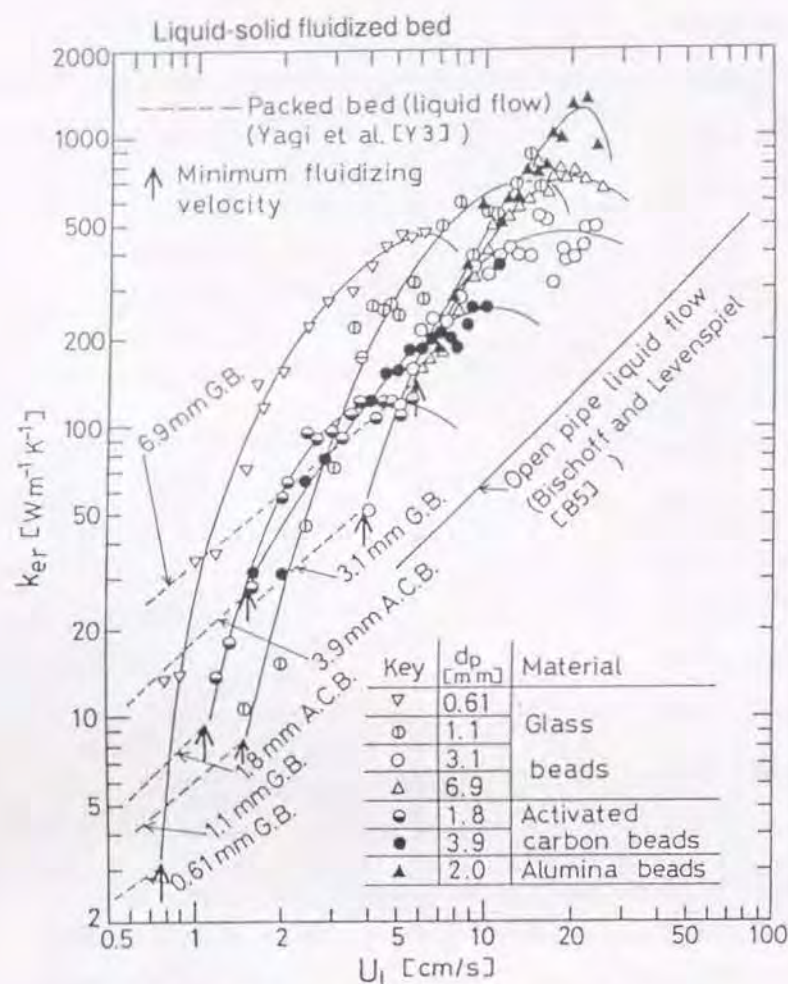


Fig. 7-9 Effective radial thermal conductivity in a liquid-solid fluidized bed.

次にFig. 7-9に液固流動層における k_{er} 対 U_l の関係を示す。また、比較のために液単相流充填層における k_{er} を、Yagiら[Y3]の式を用いて推定し破線で示し、さらに粒子の存在しない液空塔流れにおける k_{er} を、Bischoffら[B5]の E_{rl} のデータから次式を用いて推定し実線で示した。

$$k_{er} = \rho_l C_{pl} E_{rl} \quad (7-21)$$

液固流動層の k_{er} は流動化開始時(図中に↑印で示す)において、充填層の値[Y3]に一致し、流動化開始直後 U_l の増大と共に急激に増大した。このことから、粒子の流動化によって層本体中の半径方向の伝熱速度は飛躍的に増大することがわかる。 U_l をさらに増大させると、 k_{er} は最大値をとった後減少に転じ、 U_l が流動層の終末速度 U_i に等しくなると、 k_{er} は液空塔流れにおける値[B5]に漸近する。 k_{er} が最大値をとる層空隙率は約0.6~0.8の間にあり、このときの k_{er} の最大値は d_p または ρ_s の増大と共に増大する。このように液固流動層の k_{er} が最大値

をとったのは、液流速の増大と共に液相本体の流れそのものが持っている混合効果が増大する一方で、粒子濃度の減少によって、流動化している粒子によって引き起こされる液相の混合促進効果が減少し、両効果が加性的に作用した結果であると考えられる。

(c) 3相流動層における k_{er} の挙動

Fig. 7-10(a)-(d)に3相流動層の k_{er} の測定結果を示す。 k_{er} は気泡流動様式に対応した挙動を示した。1.1mmガラス球を用いた場合(Fig. 7-10(a))、流動様式は不均一気泡流であり、 k_{er} は U_g の増大と共に同じ U_l の液固流動層の k_{er} の値から大きく増大する。次に、3.1mmガラス球を用いた場合(Fig. 7-10(c))、分散気泡流域では k_{er} は U_g にほとんど影響されず、同じ U_l の液固流動層の値とほぼ等しい。この操作領域では層内の液相及び固相の混合特性が通気によってほとんど影響されないことを示している。しかし、 U_g の増大と共に流動様式がスラグ流へ変化すると k_{er} は急激に増大する。一方、 U_l の小さい不均一気泡流域では、 k_{er} は通気開始と共に徐々に増大し、 U_g を大きくして行くと k_{er} も大きくなる。2.0mmアルミナ球を用いた場合(Fig. 7-10(b))、 k_{er} の挙動は3.1mmガラス球の場合と類似した。これはアルミナ球の ρ_s の値がガラス球のそれに比べて大きいこと(Table 7-1に示す)、操作される U_l 域が3.1mmガラス球の場合とほぼ同じになった結果、両粒子を用いた場合の層内の流動状態も類似したものとなったためと考えられる。最後に、3.9mm活性炭を用いた場合(Fig. 7-10(d))、 k_{er} は U_g の増大と共に大きく増大する。この原因も層内の流動状態に着目すれば説明できる。すなわち活性炭粒子の d_p の値はここで示した4例のうちで最も大きい、 ρ_s の値は逆に最も小さく、流動層として操作される U_l 域が1.1mmガラス球の場合とほぼ同様となった結果、活性炭粒子を用いた場合の流動状態が1.1mmガラス球の場合と類似したためと考えられる。

Fig. 7-11に、3相流動層の k_{er} 対 d_p の関係をガラス球を用い、 $U_l=6.0$ 及び 12.0 cm/sの2つの場合において、種々の U_g に対して示す。いずれの U_l 及び U_g においても、 k_{er} は $d_p=0.61\sim 1.1$ mmで最大となり、そのときの k_{er} は $d_p=0$ に相当する気液2相流の値よりも大きい。これは第3章で述べたように、小粒子を用いたとき、気泡の合一が促進され、それによって層内の混合が促進されるためであることは明白である。一方、 $d_p > 1.1$ mmでは、 k_{er} は d_p の増大と共に急激に減少し、高 d_p 域では同じ U_l で操作される充填層における k_{er} [Y3]に漸近する傾向を示す。これは d_p が大きい場合、低 U_l 域における層空隙率の減少に伴う層の流動度(Mobility, 粒子群の流動しやすさを表す尺度)の減少や、高 U_l 域における分散気泡流の出現による混合効果の減少などの結果として生じたと考えられる。

以上の3相流動層における k_{er} の挙動から、 k_{er} は気泡流動様式の影響を大きく受けることがわかった。このことから3相流動層の k_{er} は気液2相流や液固流動層などの場合と同様に、層本体中の液相の半径方向の混合特性と密接に対応していると考えられる。そこで、 k_{er} と半径方向の混合特性との関係については第8章で改めて詳述する。

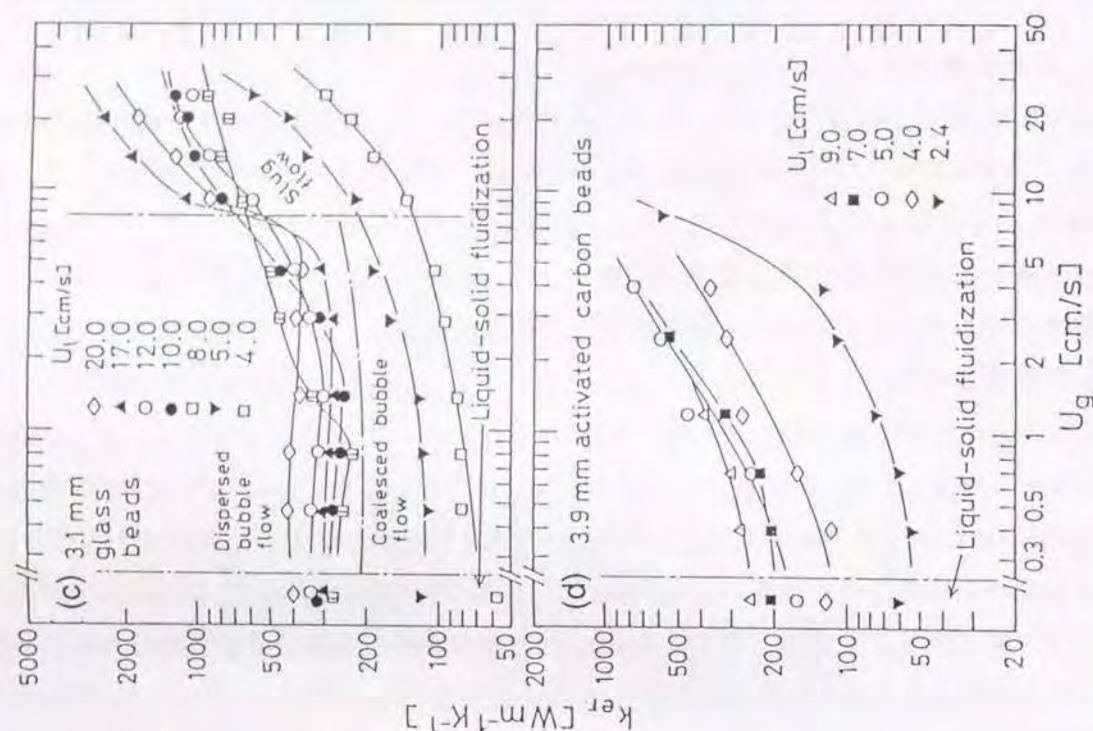
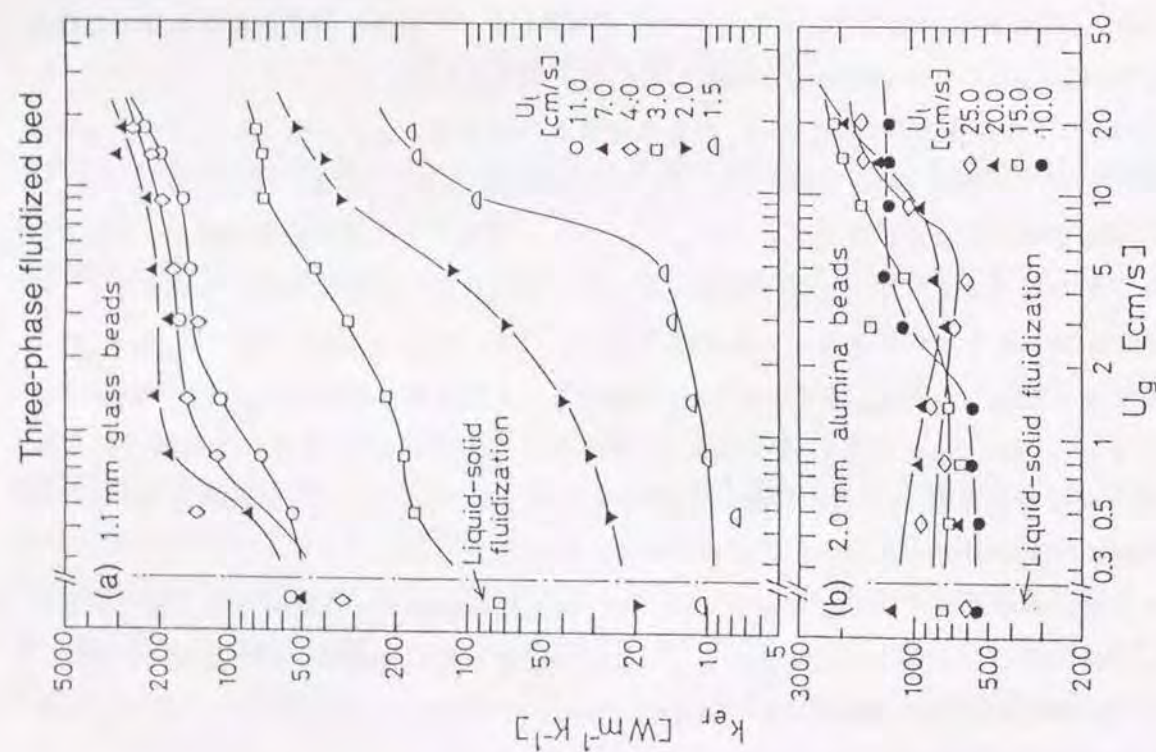


Fig. 7-10 Effective radial thermal conductivity in a three-phase fluidized bed.

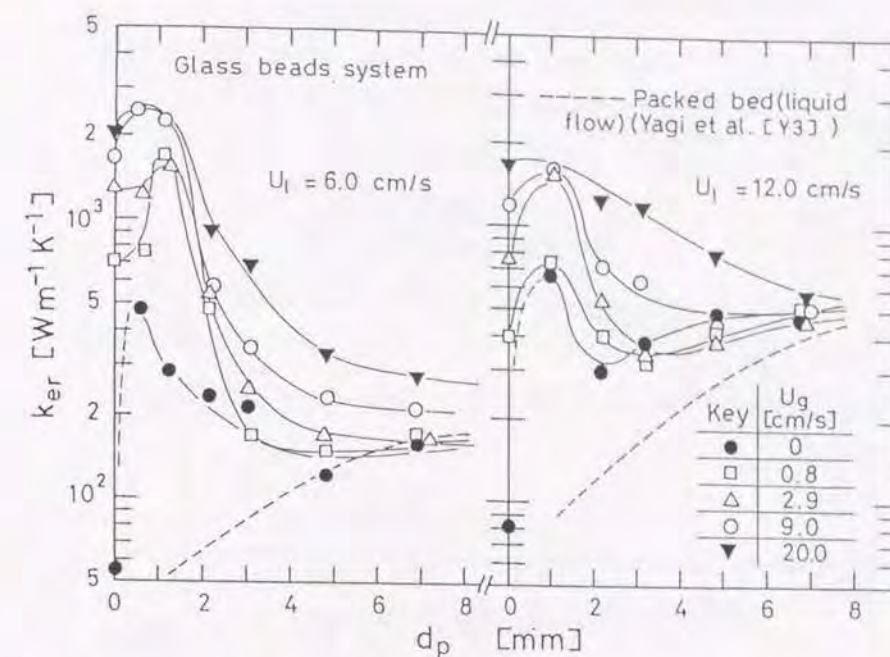


Fig. 7-11 Effect of d_p on k_{er} in a three-phase fluidized bed.

(d) 気液 2 相流および液固流動層における h_w の挙動

Fig. 7-12 に気液 2 相流における h_w の測定結果を示す。本操作では h_w は、 U_l にほとんど依存せず、Fig. 7-3 に示した h_o とほとんど同じ値である。これは気液 2 相流においては、層本体中の伝熱抵抗が総括抵抗に対して無視できることを示している。また、本実験値は Deckwer [D6] の式による気泡塔における h_w の推定値ともよく一致している。

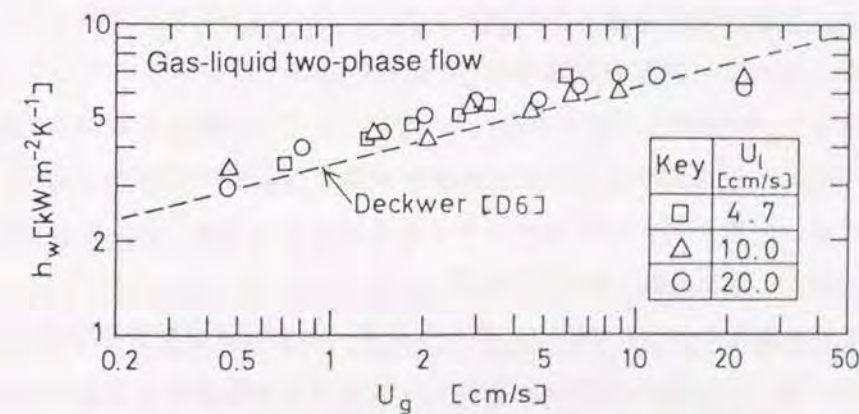


Fig. 7-12 Apparent wall heat transfer coefficient in a gas-liquid two-phase upflow.

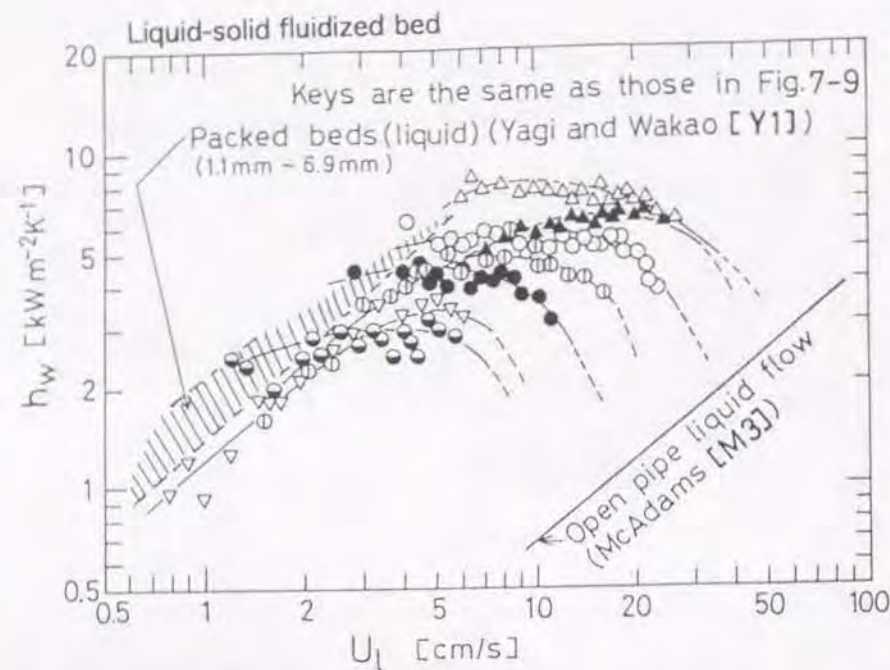


Fig. 7-13 Apparent wall heat transfer coefficient in a liquid-solid fluidized bed.

Fig. 7-13に液固流動層における h_w の測定結果を示す。また比較のために、液单相流充填層の h_w をYagiら[Y1]の式から、液空塔流れの h_w をMcAdams[M3]の式から、それぞれ推定して図中に示した。液固流動層の h_w 対 U_l の関係は上に凸の曲線で表される。それぞれの粒子に対して h_w が最大となる U_l を ϵ_l の値で表すと、ほぼ0.5~0.7であるが、 d_p の増大と共にこの ϵ_l の値は減少する傾向を示す。流動化開始時においてYagiら[Y1]の充填層の h_w と比較すると、 h_w の本実験値は d_p が大きい場合はほぼ一致したが、 d_p が小さい場合小さくなった。後者の場合の不一致の原因は、半径方向の温度分布の解析において述べたように、半径方向の温度分布の発達が十分ではないために、解析の段階で h_w に層内抵抗の一部が含まれてしまったこと、及び、充填層における h_w は壁面上の粒子の直径の1/2のオーダーの厚みにおける伝熱現象を表すものとしてモデル的に示されている[Y2]が、本実験の場合壁近傍が局所的に加熱されたことにより温度境界層の厚みが粒子径の数倍のオーダーまで相対的に大きくなり粒子層の伝熱抵抗が h_w に含まれてしまったこと、などが考えられる。

以上述べてきた液固流動層の h_w の挙動は、第6章で述べた壁面液間物質移動係数 k_w の挙動にきわめて類似している。この類似性から、壁面での伝熱と物質移動とは相似性があると推測され、壁面における伝熱に対して粒子そのものによる伝熱の寄与はほとんど無く、壁面上での伝熱は液境膜を通して起こっていると示唆される。

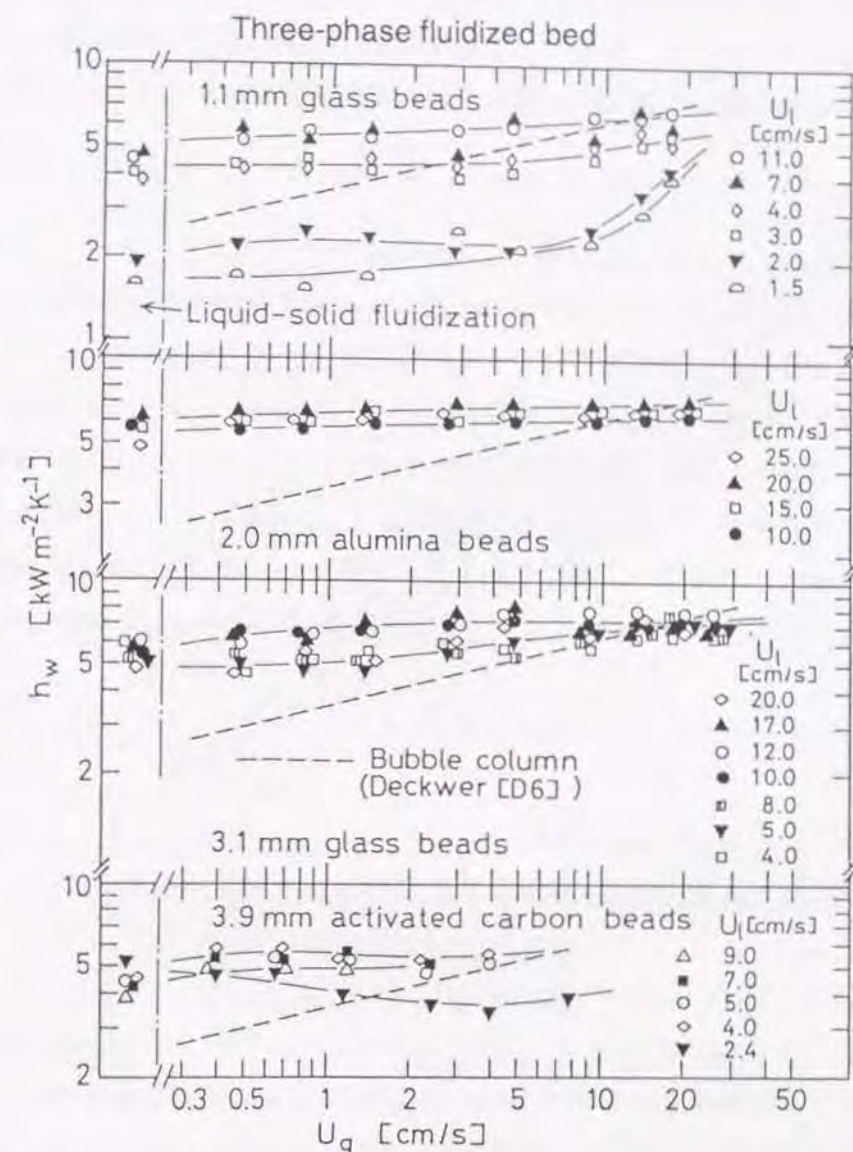


Fig. 7-14 Apparent wall heat transfer coefficient in a three-phase fluidized bed.

(e) 3相流動層における h_w の挙動

Fig. 7-14に3相流動層の h_w の測定結果を示す。また比較のために、同じ U_l の液固流動層の h_w 、およびDeckwer[D6]の式から推定した気泡塔の h_w (これは気液2相流における h_w の実験値と一致)をそれぞれ図中に示した。3相流動層の h_w の挙動は、Figs. 7-5, 7-6に示した h_o の挙動と類似している。すなわち、3相流動層の h_w は U_g の増大と共に液固流動層の h_w から徐々に増大し、高 U_g 域で気泡塔の h_w とほぼ等しくなる。また、高 U_g 域を除き、 h_w に対する U_l の影響は液固流動層の場合と同様である。以上のことから、3相流動層の h_w の挙動は液固流

動層の h_w に気泡による攪乱効果を加味したものとして説明でき、層内の気泡流動様式との間の直接的な対応関係はなかった。従って、3 相流動層の壁面における伝熱現象についても、液固流動層における伝熱の場合と同様に、壁面液間の物質移動現象との間の相似性を考えることが可能となる。

7. 3. 3 見かけの壁面伝熱係数 h_w の相関

Figs. 7-12~7-14 の結果、及び第 6 章で述べた壁面液間物質移動係数の結果から、壁面における伝熱現象と物質移動現象の操作因子に対する挙動に相似性が認められる。これより、流動層操作における壁面での伝熱は、壁面上の液境膜を通しての伝熱によって支配されていると考えられる。従って、壁面からの伝熱機構と物質移動機構との間には、アナロジーが成立していると推定され、第 6 章で提出した壁面液間物質移動係数 k_w の相関法が、 h_w の相関に対しても適用できると考えられる。そこで、このアナロジーを前提として対応する無次元数を互いに置き換え（即ち、 $Sh \rightarrow Nu$ 、 $Sc \rightarrow Pr$ ）、 k_w の相関式 (Eq. (6-4)) を h_w の相関式に変換すれば、

$$Nu_w = 0.13 (E^{1/3} D_c^{4/3} / \nu_l)^{0.75} Pr^{1/3} \quad (7-22)$$

が得られる。ここで、 $Nu_w = h_w D_c / \lambda_l$ および $Pr = C_{pl} \mu_l / \lambda_l$ であり、また E は液単位質量当りのエネルギー散逸速度であり、第 6 章で述べた Eq. (6-1) で与えられる。

$$E = (-dP_l/dz) U_l / (\epsilon_l \rho_l) + U_g g + (-dP_w/dz) U_l / (\epsilon_l \rho_l) \quad (6-1)$$

液固流動層および 3 相流動層操作で得られた h_w のデータに、気液 2 相流の h_w のデータも含めて、 $Nu_w / Pr^{1/3}$ 対 $E^{1/3} D_c^{4/3} / \nu_l$ の関係を求め Fig. 7-15 にプロットした。この図から、本研究で得た種々の多相接触装置における h_w は、Eq. (7-22) によって良好に表されることがわかった。気液 2 相流、液固流動層および 3 相流動層における h_w の Eq. (7-22) による計算値の実験値に対する相対標準偏差は、それぞれ 0.14、0.23 および 0.24 であった。従って、気液 2 相流、液固流動層および 3 相流動層の壁面における伝熱と物質移動にはアナロジーが成立すると言える。また Eq. (7-22) から h_w も k_w と同様に、 D_c には依存しないことがわかる。

ところで、Deckwer [D6] の気泡塔の h_w の相関式は容易にエネルギー散逸パラメータを用いて書き換えることができる。この書き換えた式は、Fig. 7-15 に示すように本実験と同程度の Pr 数の場合、Eq. (7-22) と良い一致を示した。

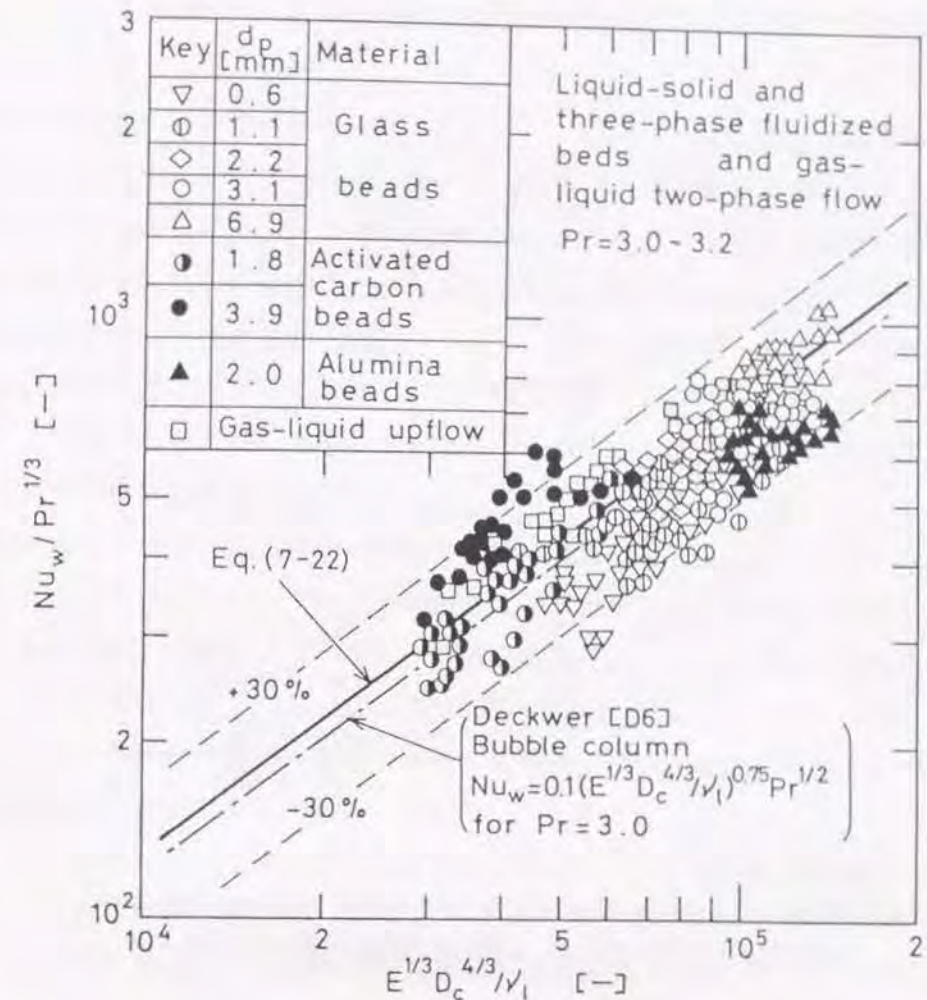


Fig. 7-15 $Nu_w / Pr^{1/3}$ vs. $E^{1/3} D_c^{4/3} / \nu_l$ in liquid-solid and three-phase fluidized bed and in a gas-liquid two-phase upflow.

7. 3. 4 層内伝熱抵抗に関する一考察

直列伝熱抵抗モデルに基づき、全伝熱抵抗を壁面伝熱抵抗と層本体内伝熱抵抗とに分離し、層本体抵抗 R_b を次式によって得た。

$$R_b = 1/h_o - 1/h_w \quad (7-23)$$

ここで、 $1/h_o$ は全伝熱抵抗を、 $1/h_w$ は壁面伝熱抵抗をそれぞれ表している。

Fig. 7-16 に、3 相流動層における全伝熱抵抗に対する層内伝熱抵抗の割合 $R_b / (1/h_o)$ の U_g に対する挙動を示す。一般に 3 相流動層の $R_b / (1/h_o)$ は、 U_g の増大と共に液固流動層の値から減少し、流動化開始液速度近傍で操作されている場合を除いて約 0.3 以下である。しかし、流動化開始液速度近傍で操作されている場合には、 $R_b / (1/h_o)$ は約 0.4 以上と大きく、全伝熱

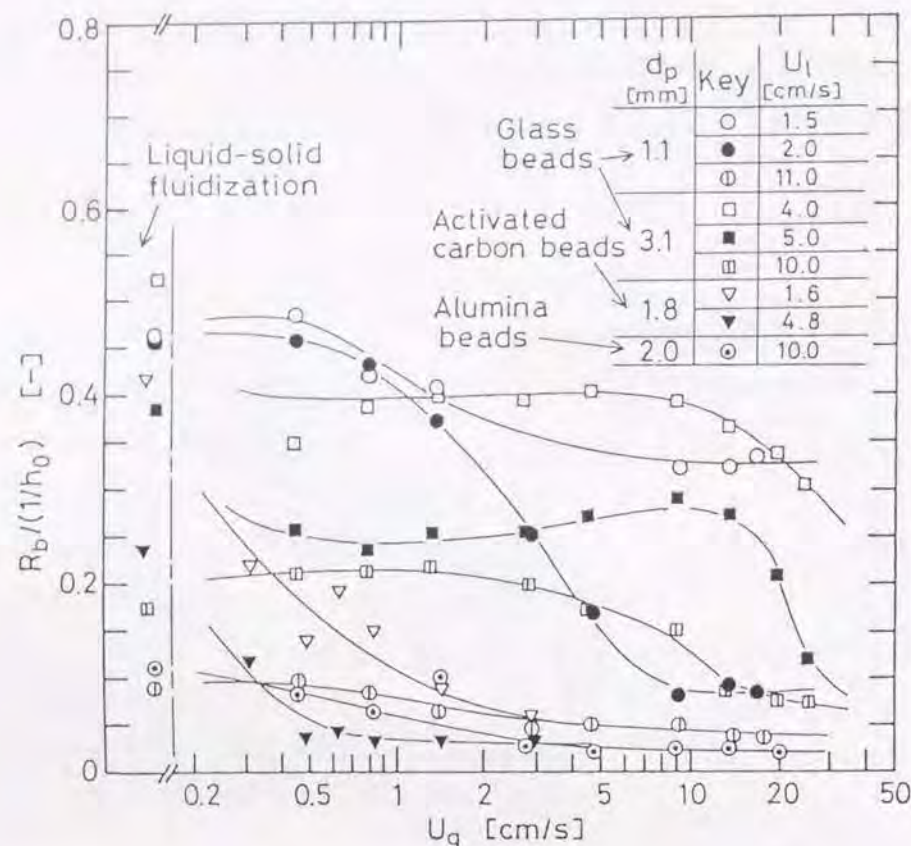


Fig.7-16 Ratio of bed resistance to the total wall-to-bed heat transfer resistance in a three-phase fluidized bed.

抵抗に対して層内抵抗が大きな割合を占めている。これは、流動化開始液速度近傍の液速度では、層の空隙率が小さいので層の流動度（粒子群の流動しやすさを表す尺度）が小さく、それによって液相の混合が阻害され、層本体中の伝熱抵抗が大きくなったためと考えられる。

層の流動性が良好な場合において、 $R_b/(1/h_0)$ に対する d_p や ρ_s などの影響をさらに詳細に見ると、まず d_p または ρ_s が小さいとき(1.1mmガラス球、1.8mm活性炭)、 U_g の増大による $R_b/(1/h_0)$ の減少の程度が大きく、またこの場合、 $U_g > 5 \text{ cm/s}$ では層内抵抗は無視小となり、一方 d_p が大きいとき(3.1mmガラス球)、 $U_g < 10 \text{ cm/s}$ では $R_b/(1/h_0)$ は通気によってもあまり減少しない。これは層内の気泡流動様式の挙動と対応させれば容易に説明付けられる。すなわち d_p または ρ_s が小さいときには、通気によって気泡の合一が進行し、層内の混合が活発に起こり、それによって層内抵抗が相対的に小さくなったと考えられるが、 d_p が大きいときには、気泡流動状態は分散気泡流となりやすく、気泡群による混合効果はほとんど生じず、したがって、通気しても層内抵抗は液固流動層のときとほとんど変わらなかったと考えられる。

以上のことから、3相流動層の $R_b/(1/h_0)$ は第一に空隙率即ち層の流動度に依存し、これに付加的に気泡流動様式に依存していることがわかった。

7. 4 h_w に及ぼす伝熱体の幾何学的因子の影響

3相流動層の壁面層間の伝熱係数は、Table 1-5に示したように円筒壁面や種々の層内挿入物の表面で測定されている。そこで、既往の伝熱実験のデータと本実験データから伝熱体の幾何学的因子が伝熱係数に及ぼす影響を検討する。ところで、既往の実験データの中には伝熱係数に層内抵抗を含んでいると考えられるものがあり(例えばChiuら[C2]のデータ)、それらは考察の対象から除外しなければならない。そこで、既往の伝熱データのうち層内抵抗の影響を含んでいない壁面係数と考えられるもののみを取り上げ、これに本研究で用いたエネルギー散逸パラメータを用いる相関法を適用して再整理し、得られた相関式の形を基に伝熱係数に及ぼす幾何学的因子の影響を検討した。

ここで、検討の対象とした操作は液固流動層及び気泡塔とした。これは、相関に必要なパラメータがこれらの操作においては3層流動層に比べて少なく、実験データとしてあるいは式により得られ易いためである。さらには、3相流動層におけるエネルギー散逸パラメータ中の E は概略液固流動層操作の E に通気による $E(=U_g g)$ を加算したものとして解釈できるので、伝熱係数に及ぼす幾何学的因子の影響を液固流動層及び気泡塔操作に対して調べれば、その結果が3相流動層にも適用できると考えられる。

エネルギー散逸パラメータに含まれる重要な変数として、液相単位質量当りのエネルギー散逸速度 E と代表寸法 D とがある。

まず E に関して検討する。流れが挿入物体を過ぎる場合には、Eq.(6-1)に含まれる各エネルギー散逸項に、さらに挿入物体の周りを液体が通過するときに生ずる抗力に起因する項を加えることによって、全エネルギー散逸速度 E の値は次式で与えられる。

$$E = (-dP_l/dz)U_l/(\epsilon_l \rho_l) + U_g g + (-dP_w/dz)U_l/(\epsilon_l \rho_l) + (\Delta P_d/D)U_l/(\epsilon_l \rho_l) \quad (7-24)$$

ここで、 ΔP_d は挿入物体周りの液流れによる圧力損失である。通気のない液固流動層操作で各項を比較してみると、Eq.(7-24)の右辺第4項目の物体周りの液流れの抗力によるエネルギー散逸速度は、水平に挿入された円筒を用いて高 U_l で操作したとき、全 E に対して大きな割合を占める。

次に D について検討する。第6章で示したように、垂直に挿入された円筒の表面、矩形流動層の壁面及び円筒型流動層の壁面における物質移動係数 k_w は、垂直方向への物質移動表面の長さが十分に大きければ、壁面の幾何学的因子の影響は受けないことがわかっている。しかし、諸岡ら[M9]が指摘しているように、垂直方向の表面長さが15mmと小さい場合には、長さが100mmと大きい場合よりも約1.7倍も大きな k_w を与えている。さらに h_w についても、Lewis

ら[L4]は気泡塔において伝熱体の垂直方向長さが約40mm以下の場合には、この長さの減少と共に h_w は増大すると報告している。このように流動層や気泡塔などの多相接触装置の物質移動や伝熱においても、輸送現象の起こる表面の流れ方向距離が長さの因子として重要である。そこで、既往の液固流動層や気泡塔の伝熱実験データのうち、伝熱体の垂直方向（即ち流れ方向）の寸法が短いもの[K8,K13,L4]を取り上げ、代表長さDとして伝熱体の垂直方向距離をとり、 $Nu_w/Pr^{1/3}$ 対 $E^{1/3}D^{4/3}/\nu_l$ の関係を求めFig.7-17(a)に示した。図中に示したデータに関する実験条件はTable 7-2に示した。

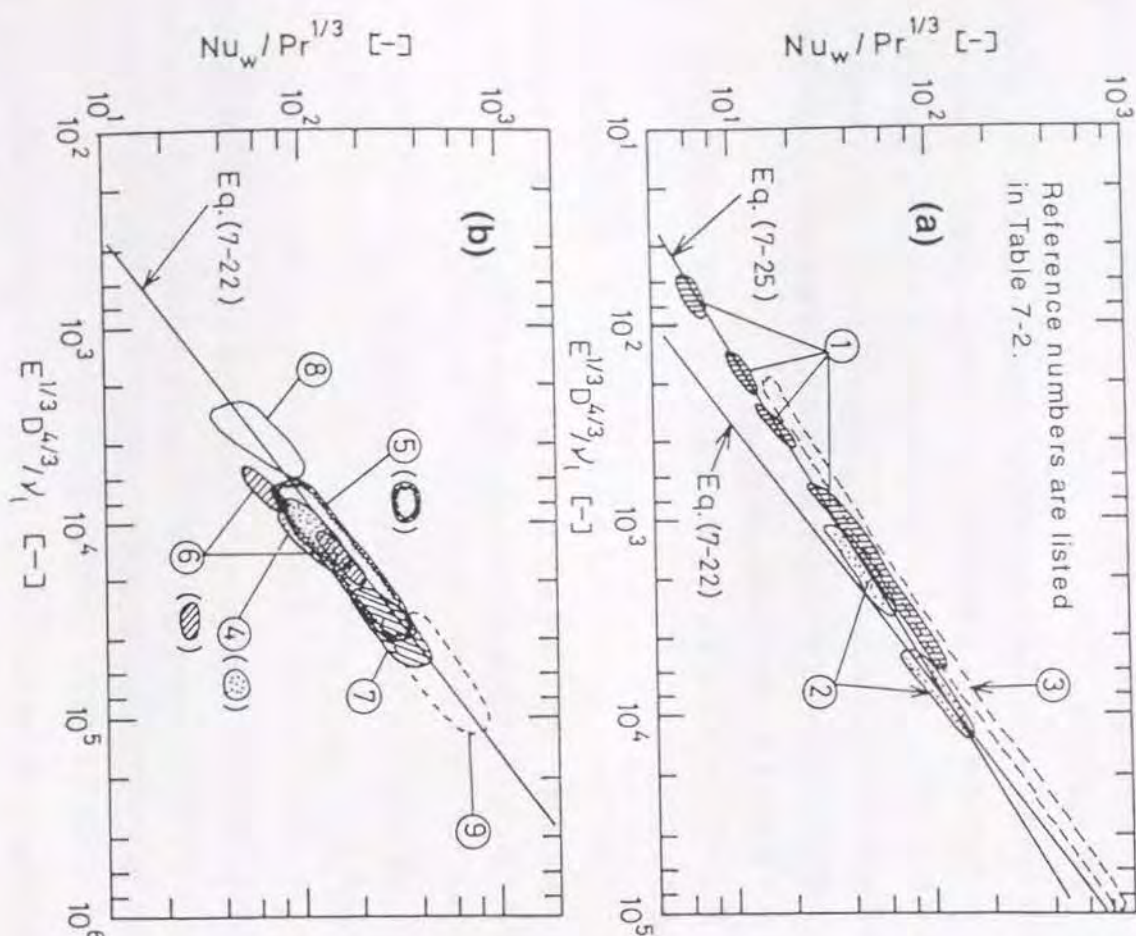


Fig.7-17 Correlation of published data on the wall heat transfer coefficient based on the energy dissipation concept.

Table 7-2 Summary of experimental systems for the data of h_w shown in Fig. 7-17

Ref. No.	Investigators	System*	Column diameter [mm]	Heater geometry	Heater size** [mm]	D***	Operational conditions
1	Khan et al. (1983) [K13]	LSF	100	immersed vertical plate	25(L)x25(W)	L	$d_p=3$ and 6.3 mm, $\rho_s=2570-2790$ kg/m ³ , $Pr=22-834$
2	Kato et al. (1984) [K8]	LSF	120	immersed horizontal cylinder	12.7 and 38(D_i) x120(L)	D_i	$d_p=0.52-3.2$ mm, $\rho_s=1620-2500$ kg/m ³ , $Pr=7$
3	Lewis et al. (1982) [L4]	BC	292	immersed horizontal and vertical cylinder	20-50(D_i)x10-150(L)	vertical dimension of heater	$Pr=7-212$
4	Wasmund (1966) [W3]	LSF	52.3	Column wall	52.3(D_c)x457(L)	D_c	$d_p=0.51-2.2$ mm, $\rho_s=2400-2980$ kg/m ³ , $Pr=6.2$
5	Simpson (1973) [S7]	LSF	50.8	Column wall	50.8(D_c)x480(L)	D_c	$d_p=0.27-2.5$ mm, $\rho_s=2530-11100$ kg/m ³ , $Pr=5-8$
6	Baker et al. (1978) [B1]	LSF	240	immersed vertical cylinder	63(D_i)x250(L)	D_i	$d_p=0.5-5$ mm, $\rho_s=2475-2955$ kg/m ³ , $Pr=9-11$
7	Kato et al. (1981) [K7]	LSF	120	Column wall	120(D_c)x100(L)	D_c	$d_p=0.42-2.2$ mm, $\rho_s=2500$ kg/m ³ , $Pr=7$
8	Kato et al. (1984) [K9]	LSF	120	immersed vertical cylinder	22(D_i)x196(L)	D_i	$d_p=0.52-3.2$ mm, $\rho_s=1620-2500$ kg/m ³ , $Pr=7$
9	This work	LSF	95.6	Column wall	95.6(D_c)x800(L)	D_c	$d_p=0.61-6.9$ mm, $\rho_s=1330-3550$ kg/m ³ , $Pr=3-3.2$

* LSF=liquid-solid fluidization and BC=bubble column

** D_i =diameter of cylindrical heater, D_c =diameter of column wall heater, L=length of heater and W=width of heater

*** D=characteristic length in Nu_w and in the specific power group

結果は、 $E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l = 9 \times 10^3$ を境にして2つの相関式で表された。まず、 $E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l > 9 \times 10^3$ ではEq.(7-22)が、一方、 $E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l \leq 9 \times 10^3$ では

$$Nu_w = 0.51 (E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l)^{0.60} Pr^{1/3} \quad (7-25)$$

がそれぞれ成立した。これら両式間の適用境界をDの大きさを表せば約30~40mmとなり、これ以上のDでは、Eq.(7-22)で示されるように h_w はDに依存しないことがわかった。

次に、伝熱体の垂直方向の寸法が40mm以上で得られた伝熱データ[B1,K7,K9,S7,W3]から、 $Nu_w / Pr^{1/3}$ 対 $E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l$ の関係を求めFig.7-17(b)に示し、それらのデータに関する実験条件をTable 7-2に示した。この場合 h_w はDに依存しなくなるので、Dの値として塔壁面でのデータであれば D_c を、挿入物表面でのデータであれば D_i をそれぞれ採用した。図中の全てのデータはEq.(7-22)によって良好に相関されている。

ところでEq.(7-25)は、第5章で提出した粒子液間物質移動係数 k_s の相関式Eq.(5-10)を、相似則に基づいて粒子液間伝熱係数 h_s に関する式に変換した式から、流体静止時の理論値 $Nu_s = 2.0$ を除いたものと同一である。このことから、多相系接触装置においてDに流れ方向距離をとった場合、 $E^{1/3} D^{4/3} / \nu_l \leq 9 \times 10^3$ の条件下では、伝熱体の周りは、粒子の周りの場合と同様に温度境界層が発達中の領域とみることができる。

結 言

伝熱面積及び伝熱推進力共に大きく取った塔壁加熱による3相流動層の伝熱特性を、液固流動層や気液2相流の伝熱特性と比較しながら検討し以下の知見を得た。

(1) 3相流動層の層内には半径方向に放物線型の温度分布が生じ、かつ壁近傍の層内温度と塔壁温度との間には大きな差が生じた。この温度の分布は直列伝熱抵抗モデルによって解析でき、これから半径方向の有効熱伝導度 k_{er} 及び見かけの壁面伝熱係数 h_w を得た。

(2) 3相流動層の k_{er} は気泡流動様式の影響を大きく受けて変化し、層内の半径方向の液混合特性と密接な関係があると推測された。一方、 h_w は気泡流動様式の影響を受けなかった。

(3) 3相流動層、液固流動層及び気液2相流の壁面における伝熱と物質移動との間にはアナロジーが成立し、壁面液間物質移動係数 k_w の相関式を、このアナロジーに基づいて h_w の相関式に変換したEq.(7-22)によって良好に相関された。

(4) 伝熱体の幾何学的因子が h_w に及ぼす影響を調べた結果、伝熱体の流れ方向寸法が約30~40mm以下の場合、 h_w はその寸法の減少と共に増大し粒子液間物質移動係数の相関式と相似なEq.(7-25)によって表されることがわかった。

第8章 3相流動層における半径方向の液混合

緒 言

前章において、3相流動層の壁面から層中心に至る半径方向の伝熱現象に関して、壁面抵抗と層本体内抵抗との2つの抵抗が直列に寄与する直列抵抗モデルを用いて解析した結果、総括の伝熱抵抗に対して層内抵抗が無視できない操作領域があることを明らかにした。そして、層本体中で半径方向への熱の伝わり易さを表す尺度である半径方向の有効熱伝導度 k_{er} は、気泡流動様式と密接に関連していることを示し、半径方向の熱移動に対して半径方向の液混合特性が重要な因子であることを示唆した。

しかし、3相流動層の半径方向の液混合特性に関する研究報告は極めて少なく[E4,K1]、半径方向の液混合特性と気泡流動様式の関係は明らかにされていない。

そこで、本章では3相流動層の半径方向の液混合拡散係数 E_{rl} をトレーサーの拡散速度から求め、 E_{rl} に及ぼす気、液、固各相の操作条件や塔径の影響を調べ、さらに半径方向の液混合と伝熱の間の相似性について検討すると共に、 E_{rl} を操作条件に対して相関した。

8.1 実験装置および解析

8.1.1 実験装置と操作

実験装置の概略をFig.8-1に示す。塔本体は内径0.074m、塔高2.3m(以後FB1と呼ぶ)及び内径0.15m、塔高3.2m(以後FB2と呼ぶ)の2種類の透明アクリル樹脂製円筒である。塔本体下部には整流部を設け、流動層部との境界には粒子径よりも小さい目開きの金網を挿入した。液体には水道水を、気体には空気をそれぞれ使用した。固体には篩分けしたガラス球および無孔性アルミナ球を使用した。粒子の特性及び実験条件をTable 8-1に示す。この実験条件は、第2章においてホールドアップを測定したときのものと同一である。従って、実験データの処理に必要な気液固各相のホールドアップの値や考察に必要な流動様式の判定などは、第2章で得た結果から対応する実験条件のものをそのまま取り出して使用した。

塔内液の採取のために、FB1の場合、半径方向に移動可能な1本の液試料採取管(内径2mm、下向きに開口)を層入口から0.77mの位置に設置した。FB2の場合には、Fig.8-1に示したように14本の液試料採取管(内径1.5mm)を異なる半径位置に取り付けた。層入口からこれらの採取管までの距離は1.4または0.9mである。

トレーサー注入管(FB1:内径1mm、FB2:内径1.7mm)を液試料採取管より下側の塔中心軸上に上向きに開口させて3本設置した。トレーサー注入口から液採取口高さまでの距離は、FB1の

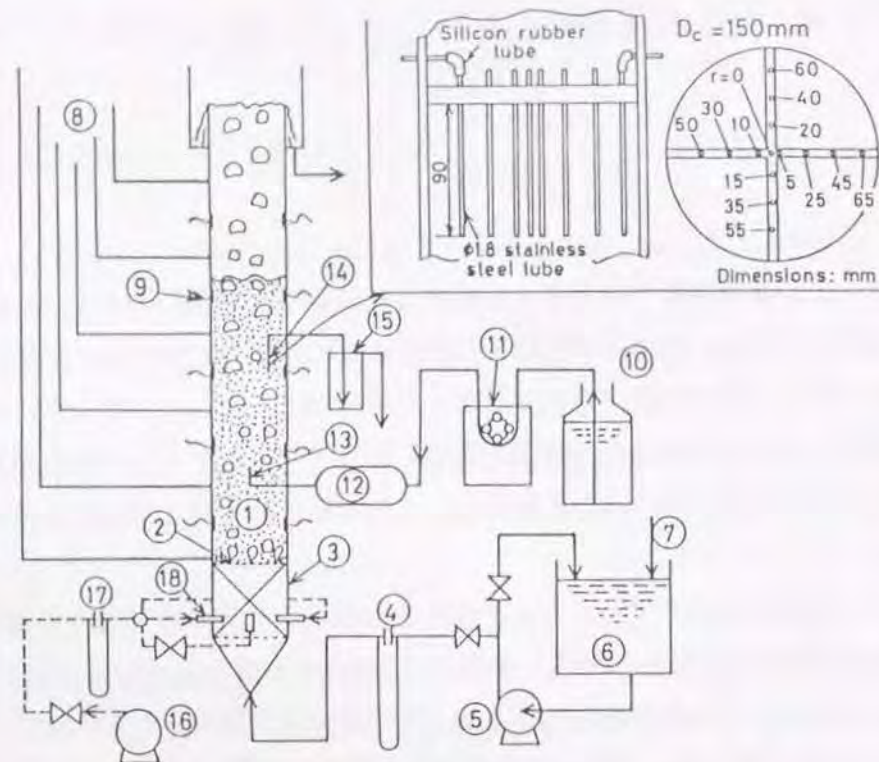


Fig.8-1 Schematic diagram of experimental apparatus.

1: Fluidized bed, 2: Bed support, 3: Calming section, 4: Liquid flow meter, 5: Pump, 6: Liquid reservoir, 7: Tap water, 8: Manometer, 9: Electroconductivity probe, 10: Tracer reservoir, 11: Tubing pump, 12: Damping chamber, 13: Tracer nozzle, 14: Sampler, 15: Sample holder, 16: Compressor, 17: Gas flow meter, 18: Gas distributor

場合、0.073、0.122および0.256mであり、FB2の場合、0.075、0.150および0.300mである。

トレーサーとしてメチレンブルー水溶液を用い、これを1本のトレーサー注入管からは液空塔速度に等しい吐出速度で定常的に塔内へ供給した。流動層内の液を液試料採取管から塔外のサンプル瓶に導き、液中のトレーサー濃度の半径方向分布を求めた。ここで、FB1の場合には採取管を半径方向に移動させ8~12点の異なる半径距離において、またFB2の場合には前述の14点の異なる半径距離においてそれぞれ液の採取を行った。こうして得られたトレーサー濃度の半径方向分布が適度な勾配を持つように、気、液、固の各相の操作条件に応じてトレーサー注入管を選択して使用した。さらに、塔頂から流出した液を採取し、トレーサー濃度の混合平均値を求めた。液試料の分析は分光光度計(日立、モデル100-10)により行った。

なお流動層高は、FB1、FB2いずれの場合においても、液採取位置よりも常に塔径の2倍以上高い位置に保った。

Table 8-1 Experimental conditions

D_c [m]	T [K]	Fluidized material	d_p [mm]	n [-]	U_i [cm/s]
0.074	293.2 ± 2	glass beads	1.1	2.76	13.5
			2.2	2.39	21.5
			3.1	2.39	27.4
			4.8	2.39	36.0
		non-porous alumina beads	2.0	2.47	27.0
0.15	283.2 ± 2	glass beads	1.1	3.05	13.0
			3.1	2.55	26.5
			4.8	2.42	35.0

Density of glass beads = 2500 kg/m^3 , density of non-porous alumina beads = 3550 kg/m^3

8. 1. 2 半径方向の液混合拡散係数 E_{rl} の算出法

層中心軸上の点源から定常的に挿入されたトレーサー濃度の半径方向分布を与える基礎式は、以下の仮定1)、2)のもとにEq.(8-1)で与えられる。

仮定1) 気、液共に半径方向の流速分布とホールドアップ分布は均一である。

仮定2) 半径方向及び軸方向の液混合拡散係数 E_{rl} 、 E_{zl} は層内全域で一定値をとる。

$$E_{zl} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} + \frac{E_{rl}}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C}{\partial r} \right) - \frac{U_l}{\epsilon_l} \frac{\partial C}{\partial z} = 0 \quad (8-1)$$

境界条件は次式で与えられる。

$$r=0; \quad C = \text{finite} \quad (8-2)$$

$$r=R_w; \quad dC/dr = 0 \quad (8-3)$$

$$z=\infty; \quad C = C_{ave} \quad (8-4)$$

境界条件Eqs.(8-2)~(8-4)を用いたEq.(8-1)の解は、Klinkenbergら[K18]によって次式で与えられている。

$$\frac{C}{C_{ave}} = 1 + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{J_0(a_i r/R_w)}{J_0^2(a_i)} \cdot \frac{1}{q_i} \cdot \exp\left\{\left(\frac{1}{2} - q_i\right) Pe_z \frac{z}{R_w}\right\} \quad (8-5)$$

$$\equiv F(Pe_r, Pe_z, r, z)$$

ここに、 a_i は $J_1(a_i)=0$ の第 i 番目の正根、 $Pe_r=U_1 R_w/(\epsilon_1 E_{rl})$ 、 $Pe_z=U_1 R_w/(\epsilon_1 E_{zl})$ であり、 q_i は次式で与えられる。

$$q_i = \sqrt{1/4 + a_i^2/(Pe_r Pe_z)} \quad (8-6)$$

一方、 C_{ave} はEq.(8-5)によるトレーサー濃度の半径方向分布を積分平均した値と定義される。しかし実際の系においては、この C_{ave} は流速分布やホールドアップ分布の不均一性などのために層出口における混合平均濃度 C_{mix} とは必ずしも一致しない。そこで既往の方法[M12,N2]に従い補正係数 $\gamma (=C_{ave}/C_{mix})$ を導入しEq.(8-5)を次式に書き改める。

$$C/C_{mix} = \gamma \cdot F(Pe_r, Pe_z, r, z) \quad (8-7)$$

Eq.(8-7)中の未知パラメータは γ 、 Pe_r および Pe_z である。これら未知パラメータは、 C/C_{mix} の半径方向分布の測定値とそれに対応するEq.(8-7)からの計算値との間の偏差2乗総和を最小にする最小2乗法[M1]を用いて決定できる。この場合、一般に Pe_z の信頼域は γ 、 Pe_r のそれらに比較して大きく、 Pe_z の最適値を決定しがたい。また、 γ と Pe_r の Pe_z に対する依存度は比較的小さい[M12,N2]。従って、以後の Pe_z の値に既往の E_{zl} に関する報告[M13]から推定される値を適用し、 γ および Pe_r の値を最小2乗法により決定した。なお、最小2乗法における γ および Pe_r の初期値には、それぞれ1及び $20 Pe_z$ を採用したが、その最小2乗近似値はそれぞれ、0.8~1.1および10~50の間にあった。また、Eq.(8-5)の右辺の級数和は項数 i の増加と共に急速に収束するので、本実験条件下では級数の第5項目までの和をとれば十分であった。得られた Pe_r から $E_{rl}(=U_1 R_w/(\epsilon_1 Pe_r))$ を求めた。

8.2 実験結果および考察

8.2.1 半径方向の液混合拡散係数 E_{rl} と E_{rh} の挙動

(a) 液固流動層の液混合拡散係数 E_{rl} と E_{rh} の挙動

Fig.8-2に液固流動層における E_{rl} 対液ホールドアップ ϵ_l の関係を示す。 E_{rl} は流動化開始直後急激に増大するが、 ϵ_l の増大と共に最大値を経て減少する。なお、流動化開始時における

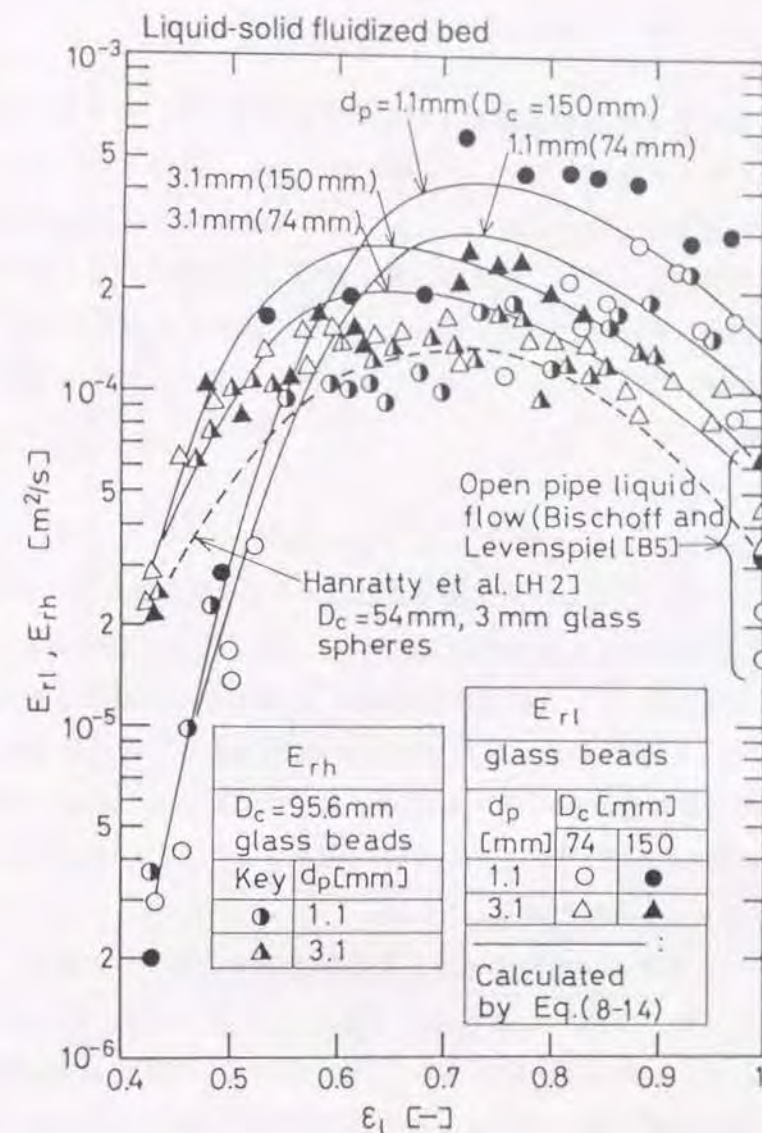


Fig.8-2 Variation in radial dispersion coefficient of liquid with liquid holdup in liquid-solid fluidized beds.

E_{rl} の値は液系充填層の E_{rl} の値[B5]に一致し(8.2.3で詳述する)、一方、 $\epsilon_l \rightarrow 1$ に伴い液空塔流れの E_{rl} の値[B5]に接近する傾向を示す。さらに塔径 D_c の増大と共に E_{rl} は増大する。

ここで、半径方向の有効熱伝導度 k_{er} (第7章参照)から液混合拡散係数を求め、本章でのトレーサー応答法から得た液混合拡散係数と比較する。層内での半径方向の熱移動は、液混合と粒子混合による対流及び液固間の伝導によって行われるが、 k_{er} のデータよりこれらの因子の寄与を分離し個々に評価するのは困難である。しかし第7章での考察から、半径方向の熱移動に対して半径方向の液混合が大きく寄与していると推論されるので、ここでは半径方向の熱移動は液混合のみによって行われると仮定し、 k_{er} の値から次式によって熱移動における液混合拡散係数 E_{rh} を求めた。

$$E_{rh} = k_{er} / (\epsilon_l \rho_l C_{pl})$$

(8-8)

ここで、 ρ_l および C_{pl} はそれぞれ液の密度および比熱である。一方、粒子混合拡散係数が液混合拡散係数と同一の値をとると仮定して k_{er} から求めた E_{rh} は、Eq.(8-8)からの E_{rh} に対して、 $\epsilon_l < 0.5$ で約35%小さい値を示した。しかし、 $\epsilon_l > 0.6$ では両者の間の偏差は20%以内であり、 E_{rh} に対する粒子混合の寄与は小さいといえる。なお使用した粒子及び液の熱伝導率は k_{er} と比較して1~3桁小さいので、熱移動に対する液固間の伝導の寄与は無視できる。

Fig.8-2から E_{rh} の挙動は E_{rl} のそれとほぼ一致しており、半径方向の熱移動と液混合との間には相似性が認められる。

(b) 3相流動層の液混合拡散係数 E_{rl} と E_{rh} の挙動

Fig.8-3に1.1mmガラス球を用いた3相流動層における E_{rl} の結果を示す。さらにEq.(8-8)を用いて第7章の k_{er} から求めた E_{rh} も同時に示し比較した。 E_{rl} は U_g の約0.5乗に比例して増大し、また流動化開始液速度近傍の U_l の範囲を除けば U_l の増大と共に減少する。また、 E_{rl} は D_c の増大と共に増大する。伝熱の場合の操作温度は約333Kであり、液粘度が本実験の場合と大きく異なるが、ほぼ同じ層膨張状態のデータ(図中のKeyで、 Δ と \triangle 、 \blacktriangle および \diamond と \blacklozenge 、 \blacklozenge)を比較すると、 $E_{rh}(D_c=0.0956m)$ は $D_c=0.074m$ と $0.15m$ の場合の E_{rl} のほぼ中間にあり、 U_l と U_g に対する E_{rh} の挙動は E_{rl} のそれと類似している。

Fig.8-4に3.1mmガラス球を用いた場合の E_{rl} の挙動を示す。 E_{rl} の挙動は、気、液の操作条件によって大きく相違した。まず、 $U_l \geq 10cm/s$ で低 U_g 域においては、 E_{rl} は U_g が増大してもほぼ一定値をとる。この E_{rl} がほぼ一定である U_g の上限は D_c の減少と共に増大する。この領域では流動状態が分散気泡流となっており、気泡による層内の攪乱作用は小さいことがわかる。しかし、 U_g の増大によって流動状態が分散気泡流からスラグ流に変化すると E_{rl} は急激に増大する。一方、 $U_l \leq 8cm/s$ では、低 U_g 域においても U_g の増大と共に E_{rl} は増大する。これは流動状態が合一気泡流(第2章参照)となっており、 U_g の増大につれて層内の気泡の合体が促進され、大気泡による攪乱作用が活発になったためである。これらいずれの流動状態においても、 E_{rl} は D_c の増大と共に増大する。また、 E_{rh} の挙動は E_{rl} のそれに類似している。

Figs.8-3,8-4の結果から、3相流動層における半径方向の熱移動と液混合の間には相似性があるといえる。

Fig.8-5に、3.1mmガラス球を用いた3相流動層の E_{rl} 対層空隙率 $\epsilon_g + \epsilon_l (=1 - \epsilon_s)$ の関係を示す。3相流動層の E_{rl} も、液固流動層の場合と同様に、層空隙率に対して最大値をとる挙動を示した。 E_{rl} が最大となる層空隙率は、全 U_g 域において0.6~0.7である。一方、同一層空隙率においては、 E_{rl} は U_g の増大と共に増大する。

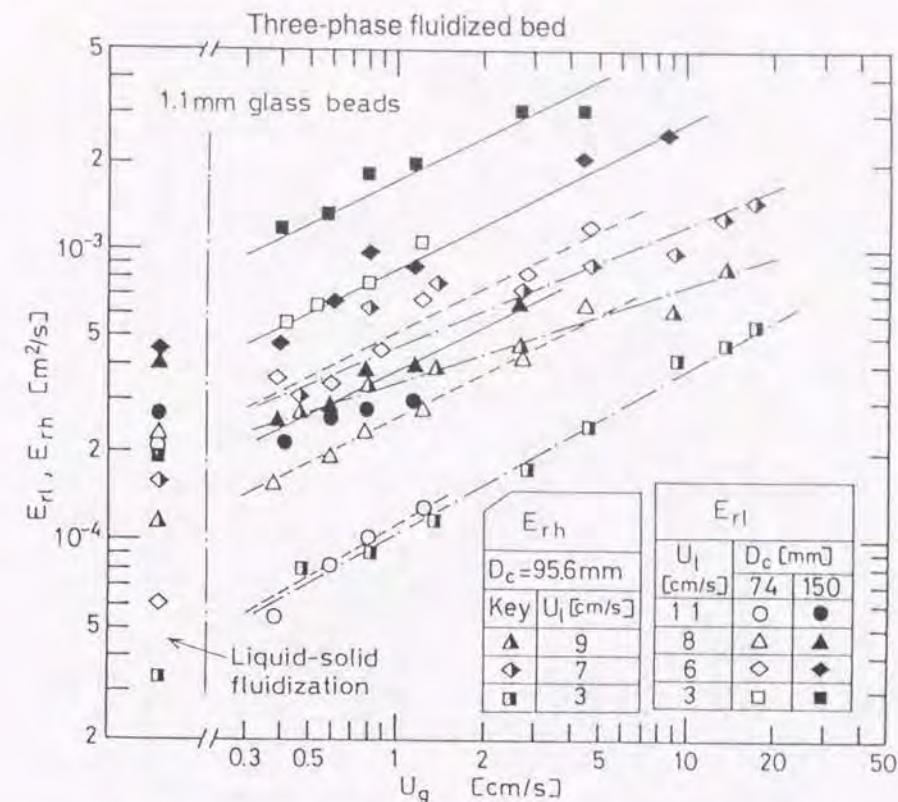


Fig.8-3 Radial dispersion coefficient of liquid in three-phase fluidized beds containing 1.1 mm glass beads.

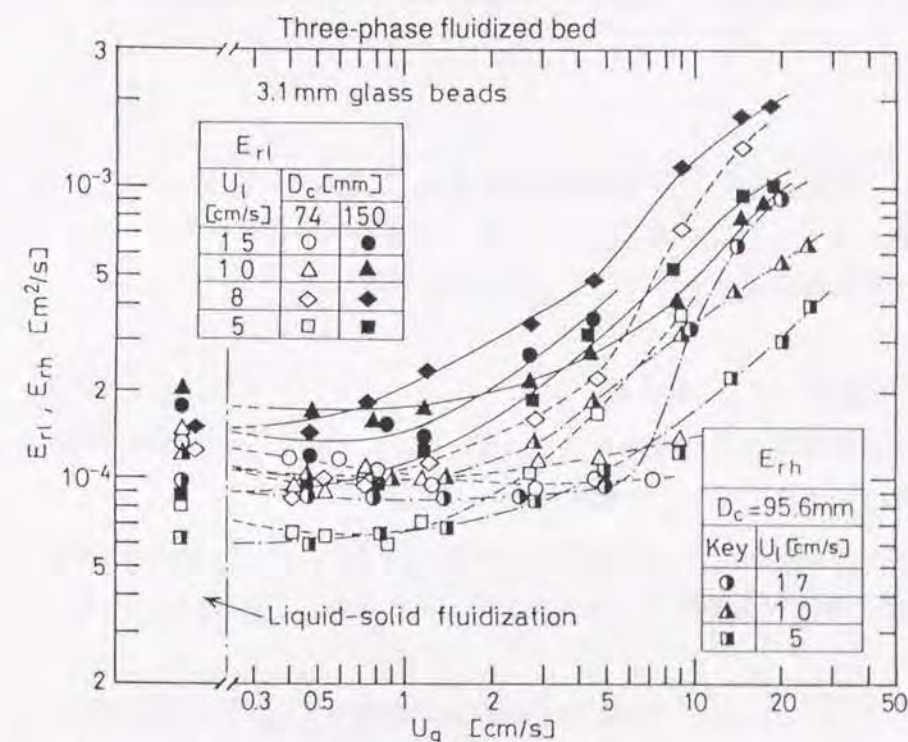


Fig.8-4 Radial dispersion coefficient of liquid in three-phase fluidized beds containing 3.1 mm glass beads.

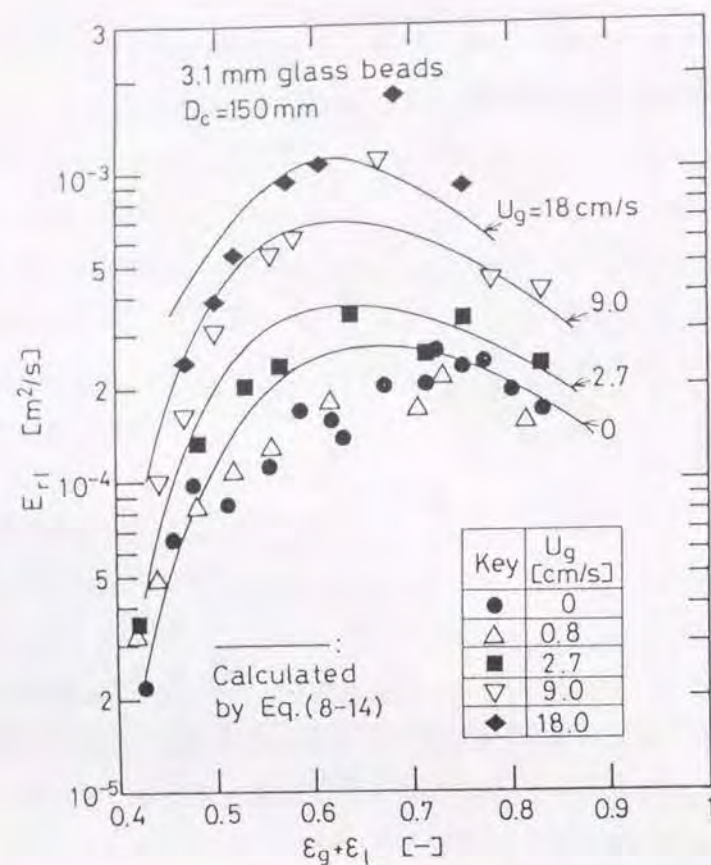


Fig. 8-5 Variation of E_{rl} with $\epsilon_g + \epsilon_l$ in a three-phase fluidized bed.

8. 2. 3 半径方向の液混合拡散係数 E_{rl} と E_{rh} の相関

まず、本実験によって得られた E_{rl} を気、液、固各相の操作条件を用いて相関した。次に、得られた相関式を伝熱の結果から得た E_{rh} の相関に適用した。

(a) 液固流動層の E_{rl} の相関

Fig. 8-6 に液固流動層における修正ペクレ数 $Pe_{rl,m}$ 対修正レイノルズ数 Re_m の関係を示す。ここで、 $Pe_{rl,m}$ および Re_m は次式によって定義した。

$$Pe_{rl,m} = d_e U_l / (\epsilon_l E_{rl}) \quad (8-9)$$

$$Re_m = d_e U_l \rho_l / (\epsilon_l \mu_l) \quad (8-10)$$

ここで、 d_e は流路の相当直径であり次式で与えられる。

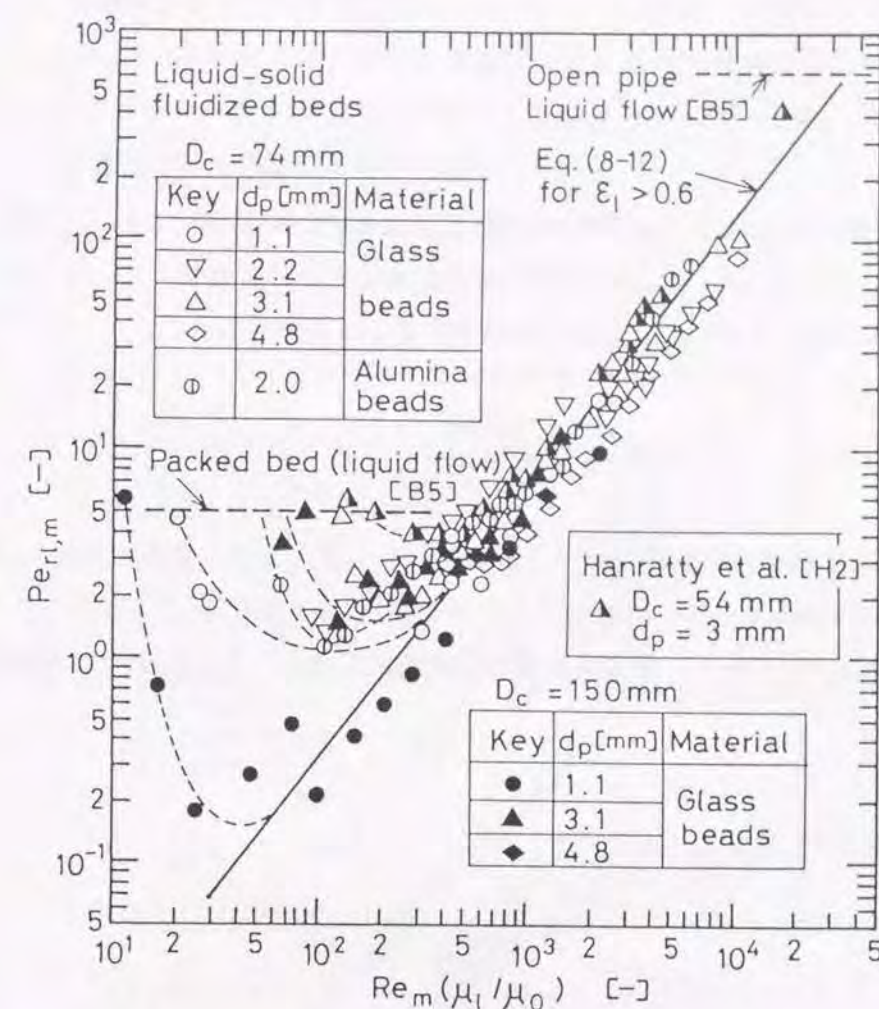


Fig. 8-6 Variation in modified radial Peclet number for liquid mixing with modified Reynolds number in liquid-solid fluidized beds.

$$d_e = \frac{\epsilon_l D_c}{1 + \frac{3}{2} \cdot \frac{D_c}{d_p} \cdot (1 - \epsilon_l)} \quad (8-11)$$

なお、Fig. 8-6 の横軸は Re_m に液の粘度 μ_l と 293.2 K の水の粘度 $\mu_0 (= 0.001 \text{ Pa} \cdot \text{s})$ の比を乗じたものを用いた。この粘度比 μ_l / μ_0 は後の E_{rh} の相関に際して液粘度の影響を補正するために導入した[N2]。

Fig. 8-6 から、液固流動層の $Pe_{rl,m}$ は流動化開始後に充填層の $Pe_{rl,m}$ [B5] から急激に減少し、 Re_m の増大と共に最小値を経て単調に増大することがわかる。この $Pe_{rl,m}$ が Re_m に対して単調に増大する領域(ほぼ $\epsilon_l > 0.6$ の操作条件に対応する)では、 $Pe_{rl,m}$ は d_p に依存せず次の実

験式によって相関された。

$$Pe_{rl,m} = 7.2 \times 10^{-4} |Re_m(\mu_l/\mu_0)|^{1.3} \quad (8-12)$$

Fig.8-7に、流動化開始液速度近傍の操作域($\varepsilon_l < 0.5$ に対応)における $Pe_{rl,m}$ 対 $Re_m/Re_{m,mf}$ の関係を示した。ここで、 $Re_{m,mf}$ は流動化開始液速度における修正レイノルズ数である。この図から、 $\varepsilon_l < 0.5$ における $Pe_{rl,m}$ は次の実験式によって相関された。

$$Pe_{rl,m} = Pe_{rl,mf} (Re_m/Re_{m,mf})^{-2.4} \quad (8-13)$$

ここで、 $Pe_{rl,mf}$ は流動化開始液速度における修正ペクレ数であり、液系充填層における半径方向の修正ペクレ数(Bischoffら[B5]の結果から、その値は5.0とおける)と一致した。

以上のEqs.(8-12),(8-13)から、液固流動層の全流動域に対して E_{rl} を相関する実験式として次式を得た。

$$Pe_{rl,m} = 5.0 (Re_m/Re_{m,mf})^{-2.4} + 7.2 \times 10^{-4} [Re_m(\mu_l/\mu_0)]^{1.3} \quad (8-14)$$

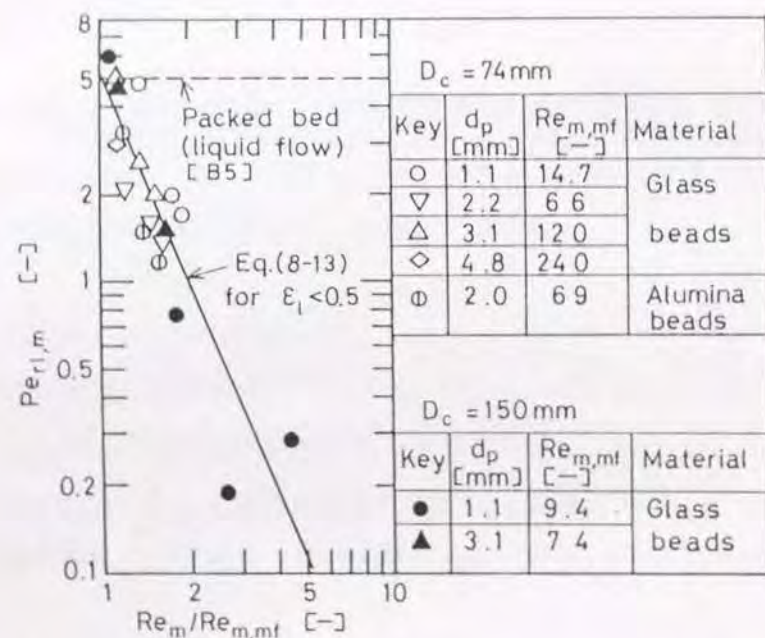


Fig.8-7 Modified radial Peclet number for liquid mixing in a region close to the incipient liquid-solid fluidization.

Fig.8-8(a)に液固流動層における E_{rl} のEq.(8-14)による計算値と実験値との比較を示す。液固流動層の E_{rl} のEq.(8-14)による計算値は、実験値に対して相対標準偏差31%で一致した。さらに、Hanrattyら[H2]のデータもEq.(8-14)を用いて良好に表された。なお、Fig.8-3中の実線はEq.(8-14)による計算値であり実験値とはほぼ一致している。

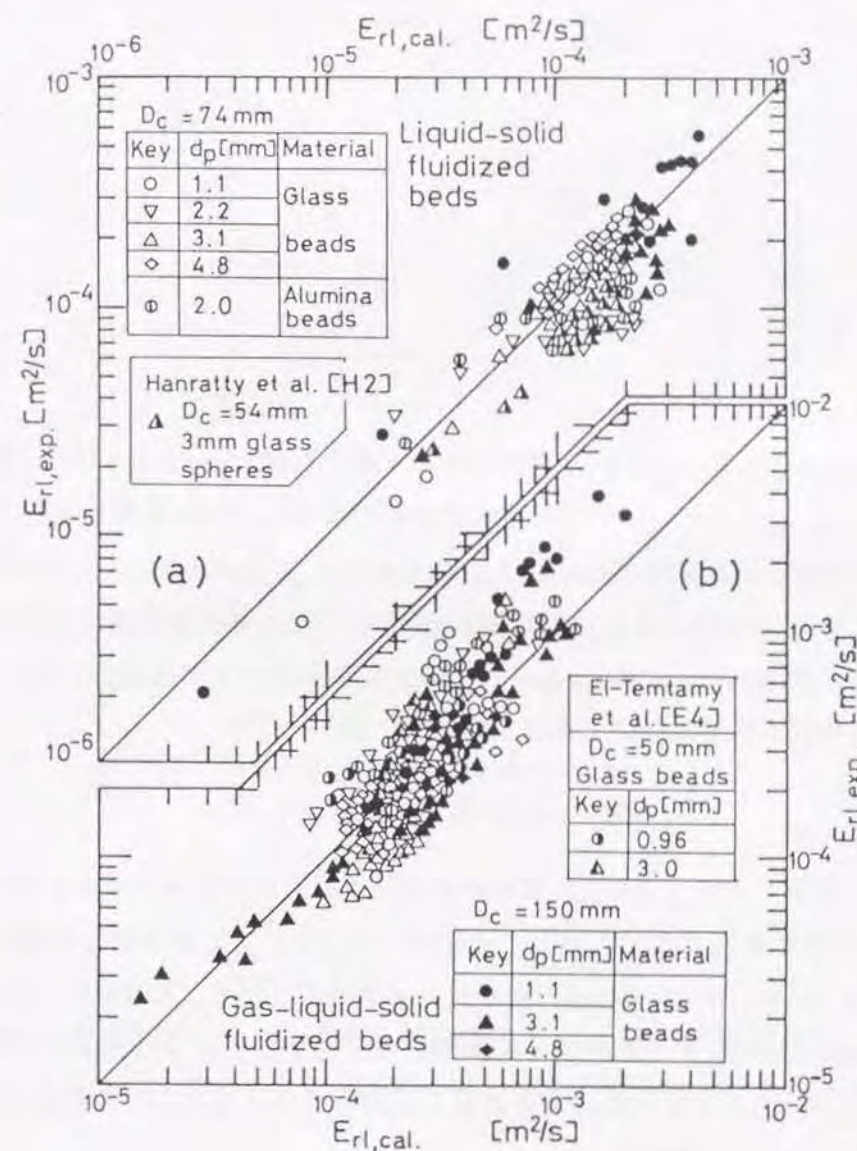


Fig.8-8 Comparison of E_{rl} values estimated by Eq.(8-14) with those observed. (a): liquid-solid fluidized beds, (b): three-phase fluidized beds

(b) 3相流動層の E_{rl} の相関

液固流動層における $Pe_{rl,m}$ に関する相関法を3相流動層の結果に応用した。すなわち、3相流動層の場合にも液固流動層と統一性（一貫性）を持った相関方法を採用した。そこで、3相流動層においては、修正ペクレ数及び修正レイノルズ数をそれぞれ次式で定義した。

$$Pe_{rl,m} = d_e (U_l + U_g) / (\epsilon_l E_{rl}) \quad (8-15)$$

$$Re_m = d_e U_l \rho_l / (\epsilon_l \mu_l) \quad (8-10)$$

なお、 d_e は次式で与えた。

$$d_e = \frac{(\epsilon_g + \epsilon_l) D_c}{1 + \frac{3}{2} \cdot \frac{D_c}{d_p} \cdot (1 - \epsilon_g - \epsilon_l)} \quad (8-16)$$

Eqs.(8-15),(8-16)は、 $U_g = 0$ ($\epsilon_g = 0$) の場合には、それぞれEqs.(8-9),(8-11)に一致する。

3相流動層の $Pe_{rl,m}$ は Re_m に対して液固流動層の場合と同様の挙動を示し、Eq.(8-14)をそのまま用いることによって相関できた。3相流動層の E_{rl} のEq.(8-14)による計算値と実験値との比較をFig.8-8(b)に示す。 E_{rl} の計算値は実験値に対して相対標準偏差40%で一致した。更に、El-Temtamyら[E4]のデータもEq.(8-14)を用いてよく表された。なお、Fig.8-5の実線はEq.(8-14)による計算値であり実験値とはほぼ一致している。

(c) E_{rh} の相関

Figs.8-2~8-5に示された E_{rh} と E_{rl} の挙動の相似性から、液固及び3相流動層の E_{rh} の相関にもEq.(8-14)が応用できると推定される。そこで、 E_{rl} を E_{rh} で置き換えた修正ペクレ数をEqs.(8-9)および(8-15)から求め、Eq.(8-14)をそのまま適用して E_{rh} の相関を行った。Fig.8-9(a),(b)に E_{rh} のEq.(8-14)による計算値と実験値との比較を示す。この図から、液固及び3相流動層の E_{rh} はEq.(8-14)によってほぼ表されることがわかる。また、この結果は k_{er} が E_{rl} を用いて推定できることを示している。

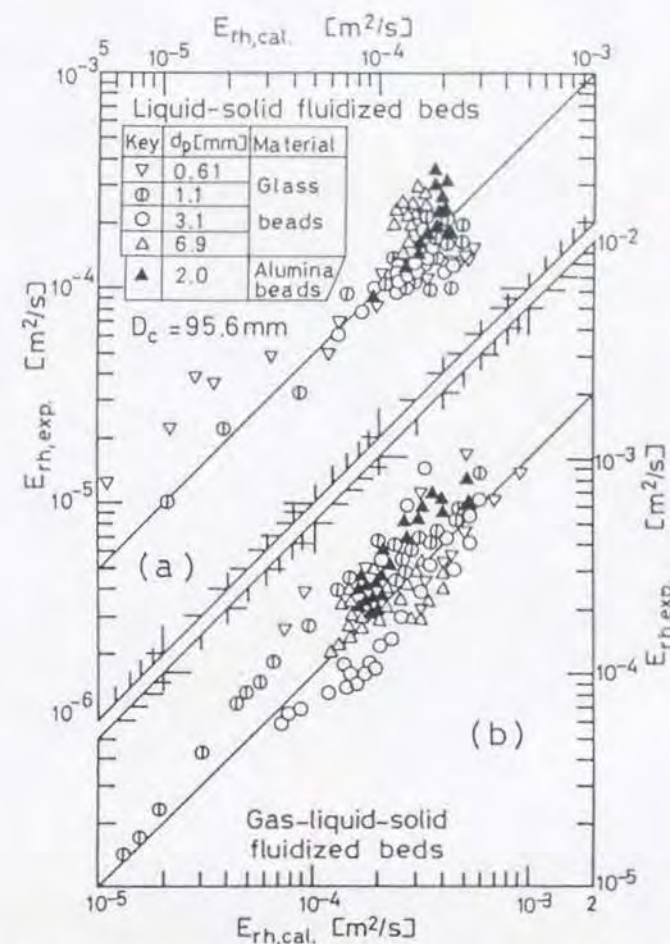
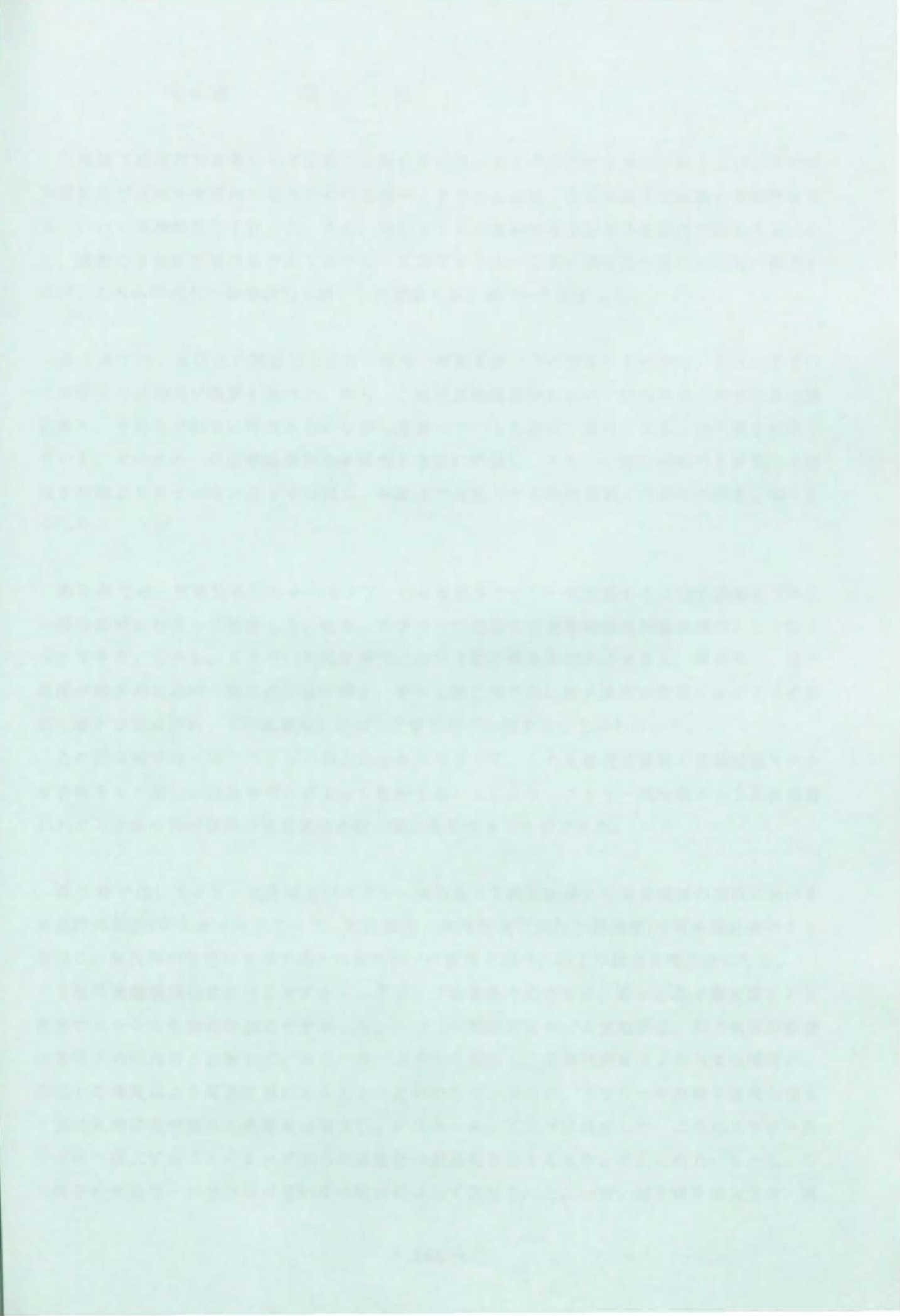
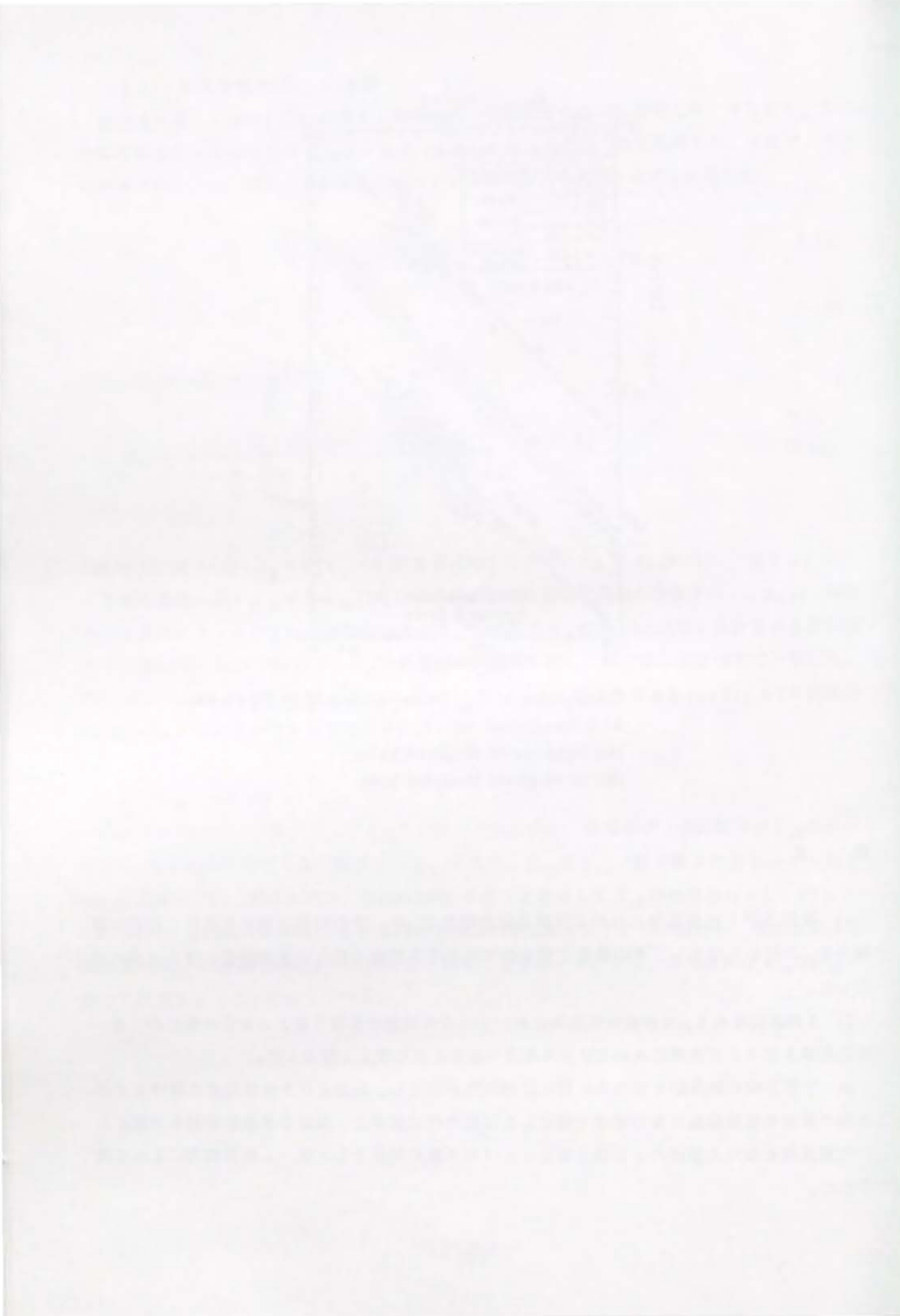


Fig.8-9 Comparison of E_{rh} values estimated by Eq.(8-14) with those observed.
(a): liquid-solid fluidized beds,
(b): three-phase fluidized beds

結 言

- 1) 液固及び3相流動層における液混合拡散係数 E_{rl} は、層空隙率の増大と共に、液系充填層の E_{rl} の値から増大し、その後最大値を経て減少する挙動を示し、また塔径の増大と共に増大した。
- 2) 3相流動層の E_{rl} は分散気泡流域においてはガス流速の影響をほとんど受けないが、合一気泡流域及びスラグ流域においてはガス流速の増大と共に著しく増大した。
- 3) 半径方向の熱移動と液混合の間には相似性が成立し、液固及び3相流動層における半径方向の液混合拡散係数は層空隙率で補正した流路の代表長さと、気液の流速を空隙率で補正した代表速度を用いた修正ペクレ数と修正レイノルズ数の関係として統一した相関式によって表された。



気液固3相系接触装置の中で広範な応用が期待される3相系流動層操作を取り上げ、その装置設計及び運転を合理的に行うための基礎データである流動、物質移動及び伝熱の各装置特性値について実験的検討を行った。また、対象とする3相系流動層操作の多様性に対処するために、狭義の3相流動層のみでなくスラリー気泡塔をも含む広範な気液固の操作に研究の範囲を広げ、これらの操作の装置特性を統一した理論基盤に基づいて解析した。

第1章では、本研究に関連した既往の研究の概要を述べその問題点を指摘し、それに基づいて本研究の目的及び概要を述べた。即ち、3相系流動層操作においては気液固3相が共存状態にあり、それらが相互に作用し合いながら運動しているために、極めて複雑な流れ系を形成している。そのため、本流動層操作の多様性を忠実に把握し、それに十分に対処できる理論基盤はまだ確立されていないことを指摘し、本論文で対象とする研究課題と問題点の所在を明らかにした。

第2章では、気液固各相のホールドアップの挙動をスラリー気泡塔から3相流動層までの広い操作領域にわたって測定した。従来、スラリー気泡塔と3相流動層は別種の操作として論じられてきた。しかし、スラリー気泡塔操作において粒子濃度を増大させると、塔底部に、粒子濃度が軸方向にはほぼ一様な濃厚粒子層と、その上部に軸方向に粒子濃度が急激に減少する希薄粒子層とが形成され、3相流動層に類似した層形態が出現することがわかった。

この様な粒子ホールドアップの軸方向分布に着目して、これを循環流理論と沈降拡散モデルを合体させた新しい流動モデルによって解析することにより、スラリー気泡塔から3相流動層にわたる広範な操作領域の流動現象を統一的に表現することができた。

第3章では、スラリー気泡塔及びスラリー気泡塔と3相流動層との境界領域の操作における気泡群の特性(ガスホールドアップ、気泡頻度、気泡径及び気泡上昇速度)を電気探針法により測定し、気泡群の特性に及ぼす種々の操作因子の影響を調べ、以下の諸点を明らかにした。

3相系流動層操作におけるガスホールドアップの半径方向分布は、塔中心部で最大値をとり壁面でゼロとなる放物線型分布を示した。スラリー気泡塔における気泡群は、同じ気液の流速の条件下の気泡塔と比較して、気泡の合一が著しく進行し、気泡径分布はより大気泡径側に、気泡上昇速度はより高速度側にあることを見いだした。さらに、スラリー中の粒子濃度の増大と共に気泡径及び気泡上昇速度は増大し、ガスホールドアップは減少した。これはスラリー粒子が液へ混入することによって生じた気泡合一促進効果によるものと考えられた。しかし、この粒子の気泡合一促進作用は液粘度の増大によって抑制された。一方、粒子径を増大させ、操

作形態が3相流動層型になるのに伴い、気泡群は液の上昇流に乗り比較的小気泡群のまま上昇することがわかった。

気泡群の体面積平均気泡径と平均気泡上昇速度との関係は、単一気泡におけるDavies-Taylorの式と同じ型の式で表されることがわかり、平均気泡上昇速度は単一気泡の場合に比較して約40%大きい値であった。また、平均気泡上昇速度はドリフト・フラックスモデルにより相関できた。これから体面積平均径はドリフト・フラックスとガスホールドアップを用いて表すことができた。

第4章では、スラリー気泡塔における気液間物質移動係数 $k_L a$ を測定し、これに及ぼす粒子濃度の影響を、今まで検討されていなかった高粒子濃度域まで範囲を広げて検討した。その結果、液相容量係数 $k_L a$ は粒子濃度の増大と共に減少することがわかった。

さらに、第3章で得た気泡特性データから気液界面積 a を求め、 $k_L a$ から液側物質移動係数 k_L を分離し、それぞれ別々に検討したところ、 k_L は体面積平均径 d_{vs} に比例して増大するが、 a は粒子濃度の増大と共に著しく減少した。従って、粒子濃度の増大による $k_L a$ の減少は、気泡の合一促進と気泡径の増大による a の著しい減少効果が、 k_L の増大効果を上回ったために生じたことがわかった。

第5章では、3相流動層および類似の操作形態をもつ気液2相流や充填層などにおける粒子液間物質移動係数 k_s を、限界電流法により層内の種々の半径位置において測定した。そして、これら多相接触装置における k_s に対する種々の操作因子の影響を総合的に調べ、これから各操作における k_s に対して統一した相関法を確立した。

3相流動層を始めとする種々の多相接触装置における k_s の半径方向分布は、壁近傍を除き一様であった。種々の多相接触装置の層平均の k_s を比較検討した結果、固体からの物質移動速度は液相に種々の形で加えられる運動エネルギー即ちエネルギー散逸速度に依存していることがわかった。これから層平均の k_s は、液相単位質量当りのエネルギー散逸速度 E を用いることによって、各操作に対して統一した相関式によって表すことが出来た。

第6章では、同心2重円筒型の3相流動層の壁面液間物質移動係数 k_w を、第5章で用いたと同様な限界電流法によって、塔中心軸上の円筒表面及び塔内壁面においてそれぞれ測定した。さらに、得られた結果を同様にして測定した気液2相流や充填層等の種々の多相接触装置の k_w と比較検討した。

その結果、3相流動層を含めた種々の多相接触装置の k_w の値は、塔中心軸上に挿入した円筒表面及び塔内壁面においてほぼ同じであること、および層入口近傍を除き軸方向に一様であることがわかった。さらに、第5章における k_s の相関と同様に、 E を用いることによって各操

作に対して統一した相関式によって表すことが出来た。

第7章では、3相流動層の壁面と層間の伝熱現象を、伝熱面積、温度推進力共に比較的大きくとして実験を行い、得られた層内の半径方向及び軸方向の温度分布を解析することによって検討した。

まず、層内の断面平均温度の軸方向分布を混合拡散モデルによって解析し、総括伝熱係数 h_o を求め、これを操作変数に対して相関した。次に、層内の半径方向温度分布を、層本体中及び壁面の両方に伝熱抵抗が存在し、これらが直列的に作用するとした伝熱抵抗モデルによって解析し、見かけの壁面伝熱係数 h_w 及び半径方向の有効熱伝導度 k_{er} を算出した。これら伝熱特性値から以下の諸点を明かにした。

3相流動層の h_w は、第6章で提出した k_w の相関式を相似的に伝熱の場合に変換した式によって表され、これより壁面における伝熱と物質移動にはアナロジーが存在することがわかった。さらに既往の種々の多相接触装置における伝熱実験データを再検討した結果、3相流動層を含めた多相接触装置の h_w は、流れ方向寸法が30~40mm以上あれば装置の寸法には影響されず、本章で提出した h_w の相関式によって表されることがわかり、一方、流れ方向寸法が30~40mm以下の場合は流れ方向寸法の減少と共に h_w は増大し、この場合、第5章で k_s を相関した式を伝熱の場合に相似的に変換した式によって相関された。 h_o と h_w のデータから全伝熱抵抗に占める層内抵抗の割合を評価し、これが一義的には層空隙率の増大と共に減少し、付加的に気泡流動様式の影響を受けていることがわかった。

3相流動層の k_{er} は気泡流動様式の影響を受けて大きく変化し、この定量的な評価のためには、半径方向の液相の混合拡散係数 E_{rl} に関する知見が不可欠であることを指摘した。

第8章では、3相流動層の E_{rl} をトレーサー応答法によって測定し、以下のことを明かにした。

3相流動層の E_{rl} は気液固の操作条件によって複雑に変化した。まず、液流速の影響は液固流動層と同様であり、一方、ガス流速の影響は、気泡流動様式によって大きく異なった。さらに、いずれの操作条件に対しても3相流動層の E_{rl} は塔径の増大と共に増大した。

第7章で検討した半径方向の熱移動と本章での液混合とは相似性が成立し、 k_{er} から推定される液混合拡散係数も含めて E_{rl} は、層空隙率で補正した流路の代表長さ、気液の流速を空隙率で補正した代表速度を用いた、修正ペクレ数と修正レイノルズ数の関係として表すことが出来た。

Nomenclature

A	= cross-sectional area of the column	$[m^2]$
A_i	= defined by Eq.(7-14a)	$[-]$
A_s	= area of electrode surface	$[m^2]$
a	= specific gas-liquid interfacial area based on unit column volume	$[m^{-1}]$
a_i	= i-th positive root of $J_1(a_i)=0$, Chap.8 only	$[-]$
Bo	= Bond number defined by $gd_{vs}^2 \rho_l / \gamma_l$, Chap.4 only	$[-]$
C	= liquid-phase oxygen concentration, Chap.4 only	$[mol\ m^{-3}]$
C	= tracer concentration, Chap.8 only	$[kg\ m^{-3}]$
C^*	= liquid-phase oxygen concentration in equilibrium to gas phase, Chap.4 only	$[mol\ m^{-3}]$
C_{ave}	= integrated average concentration of tracer	$[kg\ m^{-3}]$
C_b	= bulk concentration of ferricyanide ion	$[mol\ m^{-3}]$
C_D	= drag coefficient	$[-]$
C_{Di}	= drag coefficient for a single particle flowing at a rate of U_i against liquid	$[-]$
C_{Dr}	= drag coefficient for a single particle flowing at a rate of U_r against liquid	$[-]$
C_{D0}	= drag coefficient for a single particle fixed in liquid flowing at a rate of U_l	$[-]$
C_{mix}	= mixing-cup concentration of tracer	$[kg\ m^{-3}]$
C_{pl}	= specific heat of liquid	$[J\ kg^{-1}\ K^{-1}]$
C_{ps}	= specific heat of solid	$[J\ kg^{-1}\ K^{-1}]$
C_{pg}^*	= enthalpy increase of air saturated with water per unit increase of temperature	$[J\ K^{-1}\ kg^{-1}\ \text{-dry air}]$
C_s	= solid concentration in slurry	$[kg\ m^{-3}\ \text{-slurry}]$
C_{s1}	= solid concentration in slurry at the top of the column	$[kg\ m^{-3}\ \text{-slurry}]$
\bar{C}_s	= mean solid concentration in slurry	$[kg\ m^{-3}\ \text{-slurry}]$

C_s^*	= solid concentration in the influent slurry	$[kg\ m^{-3}\ \text{-slurry}]$
C_{sc}^*	= crytical solid concentration for the complete solids suspension	$[kg\ m^{-3}\ \text{-slurry}]$
C_{s0}	= solid concentration in slurry at the bottom of the column	$[kg\ m^{-3}\ \text{-slurry}]$
C_0	= liquid-phase oxygen concentration in the inlet stream	$[kg\ m^{-3}]$
C_1	= constant in Eq.(5-7), Chap.5 only	$[-]$
C_2	= constant in Eq.(5-8), Chap.5 only	$[-]$
D	= characteristic length of heat or mass transfer surface	$[m]$
D_c	= column diameter	$[m]$
D_i	= inner tube diameter immersed in the column	$[m]$
D_l	= molecular diffusivity of transfer species in the liquid phase	$[m^2\ s^{-1}]$
d	= distance in isotropic turbulence	$[m]$
d_e	= equivalent diameter of the bed	$[m]$
d_p	= particle diameter	$[m]$
d_{vs}	= volume-surface mean bubble diameter	$[m]$
E	= energy dissipation rate per unit mass of liquid	$[m^2\ s^{-3}]$
E_{rh}	= radial dispersion coefficient of liquid for heat transfer	$[m^2\ s^{-1}]$
E_{rl}	= radial dispersion coefficient of liquid	$[m^2\ s^{-1}]$
E_{zl}	= axial dispersion coefficient of liquid	$[m^2\ s^{-1}]$
E_{zs}	= axial dispersion coefficient of solid particles	$[m^2\ s^{-1}]$
F	= Faraday constant	$[C\ mol^{-1}]$
F_l	= cumulative bubble length distribution	$[\%]$
Fr	= Froud number of the gas defined by $U_g / \sqrt{g D_c}$	$[-]$
F_v	= cumulative bubble velocity distribution	$[\%]$
Ga	= Galilei number defined by $gd_{vs}^3 \nu_l^{-2}$	$[-]$
G_g	= mass velocity of gas	$[kg\ m^{-2}\ s^{-1}]$
G_l	= mass velocity of liquid	$[kg\ m^{-2}\ s^{-1}]$

g	= gravitational acceleration	$[m\ s^{-2}]$
H	= bed height	$[m]$
H_D	= apparent bed height of the dense region	$[m]$
h	= wall-to-bed heat transfer coefficient	$[W\ m^{-2}\ K^{-1}]$
h	= h_w/k_{er} , Chap.7 only	$[m^{-1}]$
h_o	= overall heat transfer coefficient	$[W\ m^{-2}\ K^{-1}]$
h_{o2}	= overall heat transfer coefficient in a liquid-solid fluidized bed	$[W\ m^{-2}\ K^{-1}]$
h_{o2}'	= overall heat transfer coefficient in a gas-liquid concurrent column	$[W\ m^{-2}\ K^{-1}]$
h_{o3}	= overall heat transfer coefficient in a three-phase fluidized bed	$[W\ m^{-2}\ K^{-1}]$
h_s	= solid-to-liquid heat transfer coefficient	$[W\ m^{-2}\ K^{-1}]$
h_w	= apparent wall heat transfer coefficient or wall heat transfer coefficient	$[W\ m^{-2}\ K^{-1}]$
I	= limiting current	$[A]$
J_0, J_1	= zeroth and first order Bessel functions of first kind	$[-]$
j_{Ho2}	= Colburn j-factor for h_{o2}	$[-]$
K	= electric conductivity in gas-slurry bed	$[S\ m^{-1}]$
K_0	= electric conductivity in liquid stream	$[S\ m^{-1}]$
K'	= constant in Eq.(1-5), Chap.1 only	$[-]$
k	= ratio of wake volume to bubble volume for a multi-bubble system	$[-]$
k	= constant in Eq.(3-10), Chap.3 only	$[-]$
k	= $k_{er}/(C_{pl}G_l + C_{pg}^* G_g)$, Chap.7 only	$[-]$
k_{er}	= effective radial thermal conductivity	$[W\ m^{-1}\ K^{-1}]$
k_{ez}	= effective axial thermal conductivity	$[W\ m^{-1}\ K^{-1}]$
k_l	= liquid-phase mass transfer coefficient	$[m\ s^{-1}]$
k_{la}	= volumetric liquid-phase mass transfer coefficient based on unit column volume	$[s^{-1}]$
k_s	= solid-to-liquid mass transfer coefficient	$[m\ s^{-1}]$
$k_{s,r}$	= k_s at a radial position of r	$[m\ s^{-1}]$

k_w	= wall-to-liquid mass transfer coefficient	$[m\ s^{-1}]$
$k_{w,i}$	= k_w for the inner tube immersed in the column	$[m\ s^{-1}]$
$k_{w,c}$	= k_w for the column wall	$[m\ s^{-1}]$
L	= column height	$[m]$
L	= length scale of the largest eddies in turbulence, Chap.5 only	$[m]$
L	= length of heat transfer section, Chap.7 only	$[m]$
L_b	= vertical bubble length (chord length)	$[m]$
\bar{L}_b	= arithmetic mean of L_b in the column	$[m]$
L_m	= median of bubble length distribution	$[m]$
l	= distance between two probes	$[m]$
m	= exponent in Eq.(2-5), Chap.2 only	$[-]$
N	= exponent in Eq.(3-10), Chap.3 only	$[-]$
Nu_s	= Nusselt number for solid-to-liquid heat transfer defined by $h_s D / \lambda_l$	$[-]$
Nu_w	= Nusselt number for wall-to-liquid heat transfer defined by $h_w D / \lambda_l$	$[-]$
n	= exponent in the Richardson-Zaki equation	$[-]$
n_b	= bubble frequency	$[s^{-1}]$
\bar{n}_b	= cross-sectionally averaged bubble frequency	$[s^{-1}]$
n_e	= valence change in the electrode reaction	$[-]$
P	= static pressure	$[Pa]$
ΔP_d	= pressure drop across a single particle	$[Pa]$
Pe_r	= Peclet number for radial mixing of liquid defined by $U_l R_w / (\epsilon_l E_{rl})$	$[-]$
$Pe_{rl,m}$	= modified Peclet number defined by $d_e(U_l + U_g) / (\epsilon_l E_{rl})$	$[-]$
$Pe_{rl,mf}$	= $Pe_{rl,m}$ at incipient liquid-solid fluidization	$[-]$
Pe_z	= Peclet number for axial mixing of liquid defined by $U_l R_w / (\epsilon_l E_{zl})$, Chap.8 only	$[-]$
ΔP_l	= dynamic pressure drop across a bed height	$[Pa]$
Pr	= Prandtl number of liquid defined by $C_{pl} \mu_l / \lambda_l$	$[-]$
ΔP_w	= pressure drop across a bed height due to wall friction	$[Pa]$
q_i	= coefficient defined by Eq.(8-6), Chap.8 only	$[-]$
R	= radius of spherical cap bubble	$[m]$
R_b	= bed resistance for heat transfer	$[W^{-1}\ m^2\ K]$

Re	= Reynolds number in Chap.5	[-]
Re_l	= Reynolds number of liquid defined by $d_p U_l \rho_l / \mu_l$	[-]
Re_m	= modified Reynolds number defined by $d_c U_l \rho_l / (\epsilon_l \mu_l)$	[-]
$Re_{m,mf}$	= Re_m at incipient liquid-solid fluidization	[-]
Re_t	= particle Reynolds number defined by $d_p V_t \rho_l / \mu_l$	[-]
R_w	= column radius ($=D_c/2$)	[m]
r	= radial distance from the axis	[m]
Sc	= Schmidt number defined by ν_l / D_l	[-]
Sh	= Sherwood number in Chap.5	[-]
Sh_l	= Sherwood number for gas-to-liquid mass transfer defined by $k_l d_{vs} / D_l$	[-]
Sh_s	= Sherwood number for solid-to-liquid mass transfer	[-]
Sh_w	= Sherwood number for wall-to-liquid mass transfer	[-]
T	= temperature	[K]
T_w	= wall temperature	[K]
T_0	= temperature of the inlet stream	[K]
T_m	= cross-sectionally averaged bed temperature defined by Eq.(7-3)	[K]
t	= real time	[s]
Δt	= lag time between two probe signals	[-]
U_b	= bubble rising velocity	[m s ⁻¹]
\bar{U}_b	= arithmetic mean of U_b in the column	[m s ⁻¹]
U_{b0}	= terminal rising velocity of a single bubble	[m s ⁻¹]
U_g	= superficial gas velocity	[m s ⁻¹]
U_{gc}^*	= critical gas velocity for complete solids suspension	[m s ⁻¹]
U_i	= apparent liquid velocity at unit voidage in Richardson-Zaki equation	[m s ⁻¹]
U_i'	= particle terminal velocity in a gas-liquid medium, Chap.1 only	[m s ⁻¹]
U_l	= superficial liquid velocity	[m s ⁻¹]
U_m	= median of bubble rising velocity distribution	[m s ⁻¹]
U_{mf}	= minimum fluidization velocity in a liquid-solid system	[m s ⁻¹]
U_{mf}'	= minimum fluidization velocity in a three-phase system, Chap.1 only	[m s ⁻¹]

U_r	= relative velocity between a single particle and liquid in liquid flow	[m s ⁻¹]
V_D	= drift flux of gas	[m s ⁻¹]
V_g	= mean linear gas velocity, Chap.1 only	[m s ⁻¹]
V_l	= mean linear velocity of liquid	[m s ⁻¹]
V_{lf}	= actual liquid velocity in liquid-solid fluidized region based on wake model, Chap.1 only	[m s ⁻¹]
V_{sf}	= actual solid velocity in liquid-solid fluidized region based on wake model, Chap.1 only	[m s ⁻¹]
V_p	= integrated average velocity of solid particles settling in recirculating flow region	[m s ⁻¹]
V_t	= terminal settling velocity of a single particle in stagnant liquid	[m s ⁻¹]
V_t'	= apparent particle settling velocity at unit voidage in the recirculating flow region	[m s ⁻¹]
V_{zs}	= settling velocity of solid particles	[m s ⁻¹]
v	= velocity scale of smallest eddies in isotropic turbulence	[m s ⁻¹]
\bar{v}_d^2	= mean square fluctuating velocity over a distance d in isotropic turbulence	[m ² s ⁻²]
v_l	= local linear velocity of liquid in recirculating flow regime	[m s ⁻¹]
v_p	= local settling velocity of solid particles in recirculating flow region	[m s ⁻¹]
v^*	= net linear velocity of the recirculating liquid or net increase of slip velocity due to recirculation flow	[m s ⁻¹]
W	= mass of solid contained in the column	[kg]
x	= ratio of solid holdup in the wake to that in the liquid-solid fluidized region expressed by $\epsilon_{sw} / \epsilon_{sf}$	[-]
z	= axial distance from the bottom of the column	[m]

Greek letters

α	= defined by Eq.(7-7), Chap.7 only	[-]
β	= defined by Eq.(7-8), Chap.7 only	[-]
γ	= C_{ave}/C_{mix} , Chap.8 only	[-]
γ_l	= surface tension of liquid	[N m ⁻¹]
δ	= hole diameter of gas distributor, Chap.3 only	[m]
δ	= k_{ez}/k_{er} , Chap.7 only	[-]
ϵ_g	= gas holdup	[-]
$\bar{\epsilon}_g$	= mean (or cross-sectionally averaged) gas holdup	[-]
ϵ_{gD}	= mean gas holdup in the dense region	[-]
ϵ_{gL}	= mean gas holdup in the lean region	[-]
ϵ_l	= liquid holdup	[-]
ϵ_{lD}	= mean liquid holdup in the dense region	[-]
ϵ_{lL}	= mean liquid holdup in the lean region	[-]
ϵ_{lf}	= liquid holdup in the liquid-solid fluidized region	[-]
ϵ_{lw}	= liquid holdup in the wake region (=1- ϵ_{sw})	[-]
ϵ_s	= solid holdup	[-]
$\bar{\epsilon}_s$	= mean solid holdup	[-]
ϵ_{sD}	= mean solid holdup in the dense region	[-]
ϵ_{sL}	= mean solid holdup in the lean region	[-]
ϵ_{sf}	= solid holdup in the liquid-solid fluidized region	[-]
ϵ_{sw}	= solid holdup in the wake region	[-]
ϵ_{s0}	= solid holdup at the bottom of the column	[-]
ϵ_w	= volume fraction of wake in the fluidized bed	[-]
η	= length scale of smallest eddies in isotropic turbulence	[m]
λ_l	= thermal conductivity of liquid	[W m ⁻¹ K ⁻¹]
μ_l	= liquid viscosity	[Pa s]
μ_{sl}	= apparent viscosity of slurry	[Pa s]
μ_0	= viscosity of water at 293.2 K	[Pa s]
ν_l	= kinematic viscosity of liquid	[m ² s ⁻¹]

ν_t	= turbulent kinematic viscosity	[m ² s ⁻¹]
ξ_i	= i-th positive root of Eq.(7-15)	[m ⁻¹]
ρ_g	= gas density	[kg m ⁻³]
ρ_l	= liquid density	[kg m ⁻³]
ρ_s	= solid density	[kg m ⁻³]
ρ_{sl}	= slurry density defined by $\phi_l \rho_l + \phi_s \rho_s$	[kg m ⁻³]
σ_l	= logarithmic standard deviation for bubble length distribution	[-]
σ_v	= standard deviation for bubble velocity distribution	[m s ⁻¹]
τ	= bubble duration time at probe	[s]
ϕ_l	= volume fraction of liquid in the slurry defined by $\epsilon_l/(1 - \epsilon_g)$, (=1- ϕ_s)	[-]
ϕ_{lD}	= ϕ_l in the dense region	[-]
ϕ_{lL}	= ϕ_l in the lean region	[-]
ϕ_m	= volume fraction of solid in the settled bed	[-]
ϕ_s	= volume fraction of solid in the slurry defined by $\epsilon_s/(1 - \epsilon_g)$	[-]

Literature Cited

- A1. Achwal, S.K. and J.B. Stepanek, "Holdup Profiles in Packed Beds," *Chem. Eng. J.*, 12, 69 (1976).
- A2. Akita, K. and F. Yoshida, "Gas Holdup and Volumetric Mass Transfer Coefficient in Bubble Columns," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 12, 76 (1973).
- A3. Akita, K. and F. Yoshida, "Bubble Size, Interfacial Area, and Liquid-Phase Mass Transfer Coefficient in Bubble Columns," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 13, 84 (1974).
- A4. Alvarez-Cuenca, M. and M.A. Nerenberg, "The Plug Flow Model for Mass Transfer in Three-Phase Fluidized Beds and Bubble Columns," *Can. J. Chem. Eng.*, 59, 739 (1981).
- A5. Arters, D.C. and L.-S. Fan, "Solid-Liquid Mass Transfer in a Gas-Liquid-Solid Fluidized bed," *Chem. Eng. Sci.*, 41, 107 (1986).
- B1. Baker, C.G.J., F.R. Armstrong and M.A. Bergougnou, "Heat Transfer in Three-Phase Fluidized Beds," *Powder Tech.*, 21, 195 (1978).
- B2. Begovich, J.M. and J.S. Watson, "Hydrodynamic Characteristics of Three-Phase Fluidized Beds," *Fluidization; Proc. 2nd Eng. Found. Conf. (J.F. Davidson and D.L. Kearns, eds.)* p. 190, Cambridge Univ. Press (1978).
- B3. Begovich, J.M. and J.S. Watson, "An Electroconductivity Technique for the Measurement of Axial Variation of Holdups in Three-Phase Fluidized Beds," *AIChE J.*, 24, 351 (1978).
- B4. Bhatia, V.K. and N. Epstein, "Three-Phase Fluidization; A Generalized Wake Model," *Fluidization and Its Applications (H. Angelino et al., eds.)* 372, Cepadues-Editions, Toulouse (1974).
- B5. Bischoff, K.B. and O. Levenspiel, "Fluid dispersion - generalization and comparison of mathematical models - II Comparison of models," *Chem. Eng. Sci.*, 17, 257 (1962).
- B6. Brea, F.M. and W. Hamilton, "Heat Transfer in Liquid Fluidized Beds with a Concentric Heater," *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, 49, 196 (1971).
- C1. Capuder, E. and T. Koloini, "Gas Hold-Up and Interfacial Area in Aerated Suspensions of Small Particles," *Chem. Eng. Res. Des.*, 62, 255 (1984).
- C2. Chiu, T.-M. and E.N. Ziegler, "Heat Transfer in Three-Phase Fluidized Beds," *AIChE J.*, 29, 677 (1983).
- C3. Clift, R. and J.R. Grace, "The Mechanism of Bubble Break-Up in Fluidized Beds," *Chem. Eng. Sci.*, 27, 2309 (1972).
- C4. Clift, R., J.R. Grace and M.E. Weber, "Bubbles, Drops, and Particles," Academic Press, New York (1978).
- C5. Coeuret, F., "The Fluidized Bed Electrode for the Continuous Recovery of Metals," *J. Appl. Electrochem.*, 10, 687 (1980).
- C6. Coughlin, R.W. and M. Farooque, "Electrochemical Gasification of Coal -- Simultaneous Production of Hydrogen and Carbon Dioxide by a Single Reaction Involving Coal, Water, and Electrons," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 19, 211 (1980).
- C7. Cova, D.R., "Catalyst Suspension in Gas-Agitated Tubular Reactors," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 5, 20 (1966).
- D1. Dakshinamurty, P., V. Sabrahmanyam and J.N. Rao, "Bed Porosities in Gas-Liquid Fluidization," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 10, 322 (1971).
- D2. Damronglerd, S., J.P. Coudere and H. Angelino, "Mass Transfer in Particulate Fluidization," *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, 53, 175 (1975).
- D3. Darton, R.C. and D. Harrison, "The Rise of Single Gas Bubbles in Liquid Fluidized Beds," *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, 52, 301 (1974).
- D4. Darton, R.C. and D. Harrison, "Gas and Liquid Hold-up in Three-Phase Fluidization," *Chem. Eng. Sci.*, 30, 581 (1975).
- D5. Davies, R.M. and G.I. Taylor, "The Mechanics of Large Bubbles Rising through Extended Liquids and through Liquids in Tubes," *Proc. Royal Soc. London, Ser. A*200, 375 (1950).
- D6. Deckwer, W.-D., "On the mechanism of Heat Transfer in Bubble Column Reactors," *Chem. Eng. Sci.*, 35, 1341 (1980).
- D7. Deckwer, W.-D., Y. Louisi, A. Zaidi and M. Ralek, "Hydrodynamic Properties of the Fischer-Tropsch Slurry Process," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 19, 699 (1980).
- D8. Deckwer, W.-D., K. Nguyen-Tien, B.G. Kelkar and Y.T. Shah, "Applicability of Axial Dispersion Model to Analyze Mass Transfer Measurements in Bubble Columns," *AIChE J.*, 29, 915 (1983).
- D9. Delaunay, G., A. Storck, A. Laurent and J.-C. Charpentier, "Electrochemical Study of Liquid-Solid Mass Transfer in Packed Beds with Upward Cocurrent Gas-Liquid Flow," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 19, 514 (1980).
- D10. Dhanuka, V.R. and J.B. Stepanek, "Simultaneous Measurement of Interfacial Area and

- Mass Transfer Coefficient in Three-Phase Fluidized Beds," *AIChE J.*, 26, 1029 (1980).
- E1. Eisenberg, M., C.W. Tobias and C.R. Wilke, "Selected Physical Properties of Ternary Electrolytes Employed in Ionic Mass Transfer Studies," *J. Electrochem. Soc.*, 103, 413 (1956).
- E2. El-Temtamy S.A. and N. Epstein, "Bubble Wake Solid Content in Three-Phase Fluidized Beds," *Int. J. Multiphase Flow*, 4, 19 (1978).
- E3. El-Temtamy, S.A., Y.D. El-Sharnoubi and M.M. El-Halwagi, "Liquid Dispersion in Gas-Liquid Fluidized Beds Part I: Axial Dispersion. The Axialy Dispersed Plug Flow Model," *Chem. Eng. J.*, 18, 151 (1979).
- E4. El-Temtamy, S.A., Y.D. El-Sharnoubi and M.M. El-Halwagi, "Liquid Dispersion in Gas-Liquid Fluidized Beds Part II: Axial and Radial Dispersion. The Dispersed Plug Flow Model," *Chem. Eng. J.*, 18, 161 (1979).
- E5. El-Temtamy, S.A. and N. Epstein, "Rise Velocities of Large Single Two-Dimensional and Three-Dimensional Gas Bubbles in Liquids and in Liquid Fluidized Beds," *Chem. Eng. J.*, 19, 153 (1980).
- E6. Epstein, N., "Three-Phase Fluidization: Some Knowledge Gaps," *Can. J. Chem. Eng.*, 59, 649 (1981).
- E7. Ergun, S., *Chem. Eng. Prog.*, 48, 89 (1952).
- E8. Evans, G.C. and C.F. Gerald, "Mass Transfer from Benzoic Acid Granules to Water in Fixed and Fluidized Beds at Low Reynolds Numbers," *Chem. Eng. Prog.*, 49, 135, (1953).
- F1. Fair, J.R., A.J. Lambright and J.W. Andersen, "Heat Transfer in a Sparged Contactor," *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, 1 33 (1962).
- F2. Fan, L.-S., S.-H. Chern and K. Muroyama, "Solid Mixing in a Gas-Liquid-Solid Fluidized Bed Containing a Binary Mixture of Particles," *AIChE J.*, 30, 858 (1984).
- F3. Fan, L.-S., S. Satija and K. Wisecarver, "Pressure Fluctuation in a Gas-Liquid-Solid Fluidized Bed," *AIChE Mtg.*, San Francisco (Nov. 25-30, 1984).
- F4. Fan, L.-S., R.-H. Jean and K. Kitano, "On the Operating Regimes of Cocurrent Upward Gas-Liquid-Solid Systems with Liquid as the Continuous phase," *Chem. Eng. Sci.*, 42, 1853 (1987).
- F5. Fleischmann, M. and G.H. Kelsall, "A Parametric Study of Copper Deposition in a Fluidized Bed Electrode," *J. Appl. Electrochem.*, 14, 269 (1984).
- G1. Garside, J. and M. R. Al-Dibouni, "Velocity-Voidage Relationships for Fluidization in Solid-Liquid Systems," *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, 16 206 (1977).

- G2. Godbole, S.P., A. Schumpe and Y.T. Shah, "Hydrodynamics and Mass Transfer in Bubble Columns: Effect of Solids," *Chem. Eng. Commun.*, 24, 235 (1983).
- G3. Godbole, S.P., A. Schumpe, Y.T. Shah and N.L. Carr, "Hydrodynamics and Mass Transfer in Non-Newtonian Solutions in a Bubble Column," *AIChE J.*, 30, 213 (1984).
- G4. Goodridge, F., C.J.H. King and A.R. Wright, "Performance Studies on a Bipolar Fluidized Bed Electrode," *Electrochim. Acta*, 22, 1087 (1977).
- H1. Hamilton, W., "A Correlation for Heat Transfer in Liquid Fluidized Beds," *Can. J. Chem. Eng.*, 48, 52 (1970).
- H2. Hanratty, T.J., G. Latinen and R.H. Wilhelm, "Turbulent Diffusion in Particulate Fluidized Beds of Particles," *AIChE J.*, 2, 372 (1956).
- H3. Hashimoto, K., K. Tsuto, K. Miyamoto, N. Hashimoto, N. Goto, T. Tada and S. Nagata, "Kinetics of the Hydrogenation of Mesityl Oxide: Analysis of the Reaction Mechanism by Non-linear Least Squares Method," *J. Chem. Eng. Japan*, 2, 158 (1969).
- H4. Harriot, P., "Mass Transfer to Particles: Part I. Suspended in Agitated Tanks," *AIChE J.*, 3, 93 (1962).
- H5. Hatta, S. and S. Maeda, "Heat Transfer in a Granular Catalyst Bed," *Kagaku Kikai (Japan)*, 12, 56 (1948).
- H6. Henriksen, H.K. and K. Ostergaard, "Characteristics of Large Two-Dimensional Air Bubbles in Liquids and Three-Phase Fluidized Beds," *Chem. Eng. J.*, 7, 141 (1974).
- H7. Hikita, H., S. Asai, K. Tanigawa, K. Segawa and M. Kitao, "The Volumetric Liquid-Phase Mass Transfer Coefficient in Bubble Columns," *Chem. Eng. J.*, 22, 61 (1981).
- H8. Hinze, J.O., *Turbulence*, 2nd. ed., Chap. 3, McGraw Hill Co. Inc. (1975).
- I1. Iida, Y., "Study on Local Void Fraction," *Nihon Genshiryoku Gakkaishi*, 14, 337 (1972).
- I2. Imafuku, K., T.-Y. Wang, K. Koide and H. Kubota, "The Behavior of Suspended Solid Particles in the Bubble Column," *J. Chem. Eng. Japan*, 1, 153 (1968).
- I3. Ishii, M. and N. Zuber, "Drag Coefficient and Relative Velocity in Bubbly, Droplet or Particulate Flows," *AIChE J.*, 25, 843 (1979).
- I4. Ito, R., Y. Komagawa, K. Omodaka and M. Yamamoto, "Mass Transfer at Wall of Liquid Fluidized Beds," *Kagaku Kogaku*, 37, 497 (1973).
- J1. Jagannadharaju, G.J.V. and C.V. Rao, "Ionic Mass Transfer in the Presence of

Fluidized Solids," Indian J. Technol., 3, 201 (1965).

- K1. Kang, Y. and S.D. Kim, "Radial Dispersion Characteristics of Two- and Three-Phase Fluidized Beds," Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev., 25, 717 (1986).
- K2. Kato, Y., "Gas-Liquid Contact in a Gas-Liquid-Solid Fluidized Bed," Kagaku Kogaku, 27, 7 (1963).
- K3. Kato, Y. and A. Nishiwaki, "Longitudinal Dispersion Coefficient in Bubble Column," Kagaku Kogaku, 35, 912 (1971).
- K4. Kato, Y., A. Nishiwaki, T. Kago, T. Fukuda and S. Tanaka, "Gas Holdup and Overall Volumetric Absorption Coefficient in Bubble Columns with Suspended Solid Particles, -- Absorption rate of oxygen by aqueous sodium sulfite solution --," Kagaku Kogaku, 36, 1333 (1972).
- K5. Kato, Y., A. Nishiwaki, T. Fukuda and S. Tanaka, "The Behavior of Suspended Solid Particles and Liquid in Bubble Columns," J. Chem. Eng. Japan, 5, 112 (1972).
- K6. Kato, Y., T. Kago, K. Uchida and S. Morooka, "Wall-Bed Heat Transfer Characteristics of Three-Phase Packed and Fluidized Bed," Kagaku Kogaku Ronbunshu, 6, 579 (1980).
- K7. Kato, Y., K. Uchida, T. Kago and S. Morooka, "Liquid Holdup and Heat Transfer Coefficient between Bed and Wall in Liquid-Solid and Gas-Liquid-Solid Fluidized Beds," Powder Tech., 28, 173 (1981).
- K8. Kato, Y., M. Koyama, T. Kago and S. Morooka, "Heat Transfer Coefficient between Bed and Inserted Horizontal Tube Wall in Three-Phase Fluidized Beds," Kagaku Kogaku Ronbunshu, 10, 294 (1984).
- K9. Kato, Y., Y. Taura, T. Kago and S. Morooka, "Heat Transfer Coefficient between Bed and Inserted Vertical Tube Wall in Three-Phase Fluidized Beds," Kagaku Kogaku Ronbunshu, 10, 427 (1984).
- K10. Kato, Y., S. Morooka, T. Kago, T. Saruwatari and S.-Z. Yang, "Axial Holdup Distributions of Gas and Solid Particles in Three-Phase Fluidized Bed for Gas-Liquid (Slurry)-Solid Systems," J. Chem. Eng. Japan, 18, 308 (1985).
- K11. Kato, Y., S. Morooka, M. Koyama, T. Kago and S.-Z. Yang, "Longitudinal Dispersion Coefficient of Liquid in Three-Phase Fluidized Bed for Gas-Liquid-Solid Systems," J. Chem. Eng. Japan, 18, 313 (1985).
- K12. Kawamura, K., T. Sasano and A. Mifune, "Solid-Liquid Contact in a Gas-Liquid-Solid Fluidized Bed," Kagaku Kogaku, 29, 693 (1965).
- K13. Khan, A.R., A.K.A. Juma and J.F. Richardson, "Heat Transfer from a Plane Surface to Liquids and to Liquid-Solid Fluidized Beds," Chem. Eng. Sci., 38, 2053 (1983).

- K14. Kikuchi, K., T. Sugawara and H. Ohashi, "Correlation of Mass Transfer Coefficient between Particles and Liquid in Liquid Fluidized Beds," J. Chem. Eng. Japan, 16, 426 (1983).
- K15. Kim, S.D., C.G.J. Baker and M.A. Bergougnou, "Phase Hold-Up Characteristics of Three Phase Fluidized Beds," Can. J. Chem. Eng., 53, 134 (1975).
- K16. Kim, S.D., C.G.J. Baker and M.A. Bergougnou, "Bubble Characteristics of Three Phase Fluidized Beds," Chem. Eng. Sci., 32, 1299 (1977).
- K17. Kim, S.D., and C.H. Kim, "Axial Dispersion Characteristics of Three-Phase Fluidized Beds," J. Chem. Eng. Japan, 16, 172 (1983).
- K18. Klinkenberg, A., H.J. Krajenbrink and H.A. Lauwerier, "Diffusion in a Fluid Moving at Uniform Velocity in a Tube," Ind. Eng. Chem., 45, 1202 (1953).
- K19. Koide, K., T. Hirahara and H. Kubota, "Average Bubble Diameter, Slip Velocity and Gas Holdup of Bubble Swarms," Kagaku Kogaku, 30, 712 (1966).
- K20. Koide, K., T. Yasuda, S. Iwamoto and E. Fukuda, "Critical Gas Velocity Required for Complete Suspension of Solid Particles in Solid-Suspended Bubble Columns," J. Chem. Eng. Japan, 16, 7 (1983).
- K21. Koide, K., A. Takazawa, M. Ko-mura and H. Matsunaga, "Gas Holdup and Volumetric Liquid-Phase Mass Transfer Coefficient in Solid-Suspended Bubble Columns," J. Chem. Eng. Japan, 17, 459 (1984).
- K22. Kojima, H. and K. Asano, "Hydrodynamic Characteristics of a Suspended-Bubble Column," Kagaku Kogaku Ronbunshu, 6, 46 (1980), idem, Intern. Chem. Eng., 21, 473 (1981).
- K23. Kojima, H., PETROTECH, 4, 219 (1981).
- K24. Kolbel, H., E. Brochers and K. Muller, "Warmeubergang an Blasensauken-II. Messungen an Viscosen Suspensionen," Chem.-Ing.-Tech., 30, 729 (1958).
- K25. Kolbel, H., E. Brochers and J. Martins, "Warmeubergang an Blasensauken-III. Messungen an Gasdurchstromten Suspensionen," Chem.-Ing.-Tech., 32, 84 (1960).
- K26. Koloini, T., M. Sopcić and M. Zumer, "Mass Transfer in Liquid-Fluidized Beds at Low Reynolds Numbers," Chem. Eng. Sci., 32, 637 (1977).
- L1. Lee, J.C., A.J. Sherrard and P.S. Buckley, "Optimum Particle Size in Three Phase Fluidized Bed Reactors," Fluidization and Its Applications (H. Angelino et al. Eds.), p.407 Cepadues-Editions, Toulouse (1974).
- L2. Leveque, J.: Ann. Mines., 13, 201, 305, 381 (1928).

- L3. Levins, D.M. and J.R. Glastonbury, "Particle-Liquid Hydrodynamics and Mass Transfer in a Stirred Vessel, Part II -- Mass Transfer," *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, 50, 132 (1972).
- L4. Lewis, D.A., R.W. Field, A.M. Xavier and D. Edwards, "Heat Transfer in Bubble Columns," *Trans. IChemE*, 60, 40 (1982).
- M1. Marquardt, D.W., "An Algorithm for Least-Squares Estimation of Nonlinear Parameters," *J. Soc. Indust. Appl. Math.*, 11, 431 (1963).
- M2. Matsuura, A. and L.-S. Fan, "Distribution of Bubble Properties in a Gas-Liquid-Solid Fluidized Bed," *AIChE J.*, 30, 894 (1984).
- M3. McAdams, W.H., *Heat Transmission* (Third Ed.), McGraw-Hill Book Company Inc., 1954.
- M4. McCune, L.K. and R.H. Wilhelm, "Mass and Momentum Transfer in Solid-Liquid System," *Ind. Eng. Chem.*, 41, 1124 (1949).
- M5. Michelsen, M.L. and K. Ostergaard, "Hold-Up and Fluid Mixing in Gas-Liquid Fluidized Beds," *Chem. Eng. J.*, 1, 37 (1970).
- M6. Miyauchi, T., S. Furusaki, S. Morooka and Y. Ikeda, "Transport Phenomena and Reaction in Fluidized Catalyst Beds," *Advances in Chemical Engineering*, 11, 275, Academic Press (1981).
- M7. Mizushima, T., "The Electrochemical Method in Transport Phenomena," *Advances in Heat Transfer*, 7, 87, Academic Press (1977).
- M8. Mochizuki, S. and T. Matsui, "Liquid-Solid Mass Transfer Rate in Liquid-Gas Upward Cocurrent Flow in Packed Beds," *Chem. Eng. Sci.*, 29, 1328 (1974).
- M9. Morooka, S., K. Kusakabe and Y. Kato, "Mass Transfer Coefficient at Wall of Rectangular Fluidized Beds for Liquid-Solid and Gas-Liquid-Solid Systems," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 5, 162 (1979), *idem*, *Intern. Chem. Eng.*, 20, 433 (1980).
- M10. Morooka, S., K. Uchida and Y. Kato, "Recirculating Turbulent Flow of Liquid in Gas-Liquid-Solid Fluidized Bed," *J. Chem. Eng. Japan*, 15, 29 (1982).
- M11. Mukherjee, R.N., P. Bhattacharya and D.K. Taraphdar, "Studies on the Dynamics of Three Phase Fluidization," *Fluidization and Its Application* (H. Angelino et al. eds.), 372, Cepadues-Editions, Toulouse (1974).
- M12. Muroyama, K., M. Uegaki, K. Hashimoto and S. Nagata, "Radial Liquid Dispersion in Gas-Liquid Cocurrent Flow through Packed Beds," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 1, 520 (1975).
- M13. Muroyama, K., K. Hashimoto, T. Kawabata and M. Shiota, "Axial Liquid Mixing in

- Three-Phase Fluidized Beds," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 4, 622 (1978).
- M14. Muroyama, K., *Chemical Engineering*, 29, 910, Kagaku Kogakusha, Japan (1984).
- M15. Muroyama, K. and L.-S. Fan, "Fundamentals of Gas-Liquid-Solid Fluidization," *AIChE J.*, 31, 1 (1985).
- N1. Nakamura, M., K. Hioki, A. Takahashi, H. Tanahashi and S. Watarai, "Fluid Flow Characteristic of the Three Phase Fluidized Bed with Perforated Plates," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 4, 473 (1978).
- N2. Nakamura, M., T. Tashita and S. Sugiyama, "Radial Liquid Mixing in a Packed Bed with Gas-Liquid Cocurrent Upflow," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 7, 151 (1981), *idem*, *Intern. Chem. Eng.*, 23, 307 (1983).
- N3. Nakao, K., H. Takeuchi, H. Kataoka, H. Kaji, T. Otake and T. Miyauchi, "Mass Transfer Characteristics of Bubble Columns in Recirculation Flow Regime," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 22, 577 (1983).
- N4. Narayanan, S., V.K. Bhatia and D.K. Guha, "Suspension of Solids by Bubble Agitation," *Can. J. Chem. Eng.*, 47, 360 (1969).
- N5. Neal, L.G. and S.G. Bankoff, "A High Resolution Resistivity Probe for Determination of Local Void Properties in Gas-Liquid Flow," *AIChE J.*, 9, 490 (1963).
- N6. Nguyen-Tien, K., A.N. Patwari, A. Schumpe and W.-D. Deckwer, "Gas-Liquid Mass transfer in Fluidized Particle Beds," *AIChE J.*, 31, 194 (1985).
- N7. Nicodemo, L., L. Nicolais and R.F. Landel, "Shear Rate Dependent Viscosity of Suspensions in Newtonian and Non-Newtonian Liquids," *Chem. Eng. Sci.*, 29, 729 (1974).
- N8. Nikov, I. and H. Delmas, "Solid-Liquid Mass Transfer in Three-Phase Fixed and Fluidized Beds," *Chem. Eng. Sci.*, 42, 1089 (1987).
- N9. Nishikawa, M., K. Shiino, T. Kayama, S. Nishioka and K. Hashimoto, "Gas Absorption in a Multi-Stage Gas-Liquid Spouted Vessel," *J. Chem. Eng. Japan*, 18, 496 (1985).
- O1. Ohashi, H., T. Sugawara, K. Kikuchi and T. Henmi, "Mass Transfer between Particles and Liquid in Solid-Liquid Two-Phase Upflow in Vertical Tubes," *J. Chem. Eng. Japan*, 12, 190 (1979).
- O2. Ohashi, H., T. Sugawara, K. Kikuchi and H. Konno, "Correlation of Liquid-Solid Mass Transfer Coefficient for Single Particles and Fixed Beds," *J. Chem. Eng. Japan*, 14, 433 (1981).
- O3. Ohashi, H., T. Sugawara and K. Kikuchi, "Mass Transfer between Particles and Liquid

in Solid-Liquid Two-Phase Upflow in the Low-Velocity Region through Vertical Tubes," *J. Chem. Eng. Japan*, 14, 489 (1981).

- O4. Oloman, C. and A.P. Watkinson, "The Electroreduction of Oxygen to Hydrogen Peroxide on Fluidized Cathodes," *Can. J. Chem. Eng.*, 53, 268 (1975).
- O5. Ostergaard, K. and W. Suchozebrski, "Gas-Liquid Mass Transfer in Gas-Liquid Fluidized Beds," *Proc. Eur. Symp. Chem. React. Eng.*, p. 21, Pergamon Press, Oxford (1969).
- O6. Ostergaard, K., "Holdup, Mass Transfer and Mixing in Three-Phase Fluidization," *AIChE Symp. Ser.*, 74, 82 (1978).
- P1. Patel, R.D. and J.M. Simpson, "Heat Transfer in Aggregative and Particulate Liquid-Fluidized Beds," *Chem. Eng. Sci.*, 32, 67 (1977).
- P2. Prakash, A., C.L. Briens and M.A. Bergougnou, "Mass Transfer between Solid Particles and Liquid in a Three Phase Fluidized Bed," *Can. J. Chem. Eng.*, 65, 228 (1987).
- Q1. Quickwer, G., A. Schumpe and W.-D. Deckwer, "Gas-Liquid Interfacial Areas in a Bubble Column with Suspended Solids," *Chem. Eng. Sci.*, 39, 179 (1984).
- R1. Rahman, K. and M. Sreat, "Mass Transfer in Liquid Fluidized Beds of Ion Exchange Particles," *Chem. Eng. Sci.*, 36, 293 (1981).
- R2. Ranz, W.E. and W.R. Marshall, Jr.: *Chem. Eng. Progr.*, 48, 141 (1952).
- R3. Riba, J.P. and J.P. Couderc, "Transfert de Matiere Autour D'une Sphere Immergee dans une Couche Fluidisee par un Liquide," *Int. J. Heat Mass Transfer*, 23, 909 (1980).
- R4. Richardson, J.F. and W.N. Zaki, "Sedimentation and Fluidization: Part I," *Trans. Instn. Chem. Engers*, 32, 35 (1954).
- R5. Rigby, G.R., G.P. Van Blockland, W.H. Park and C.E. Capes, "Properties of Bubbles in Three Phase Fluidized Beds as Measured by an Electroresistivity Probe," *Chem. Eng. Sci.*, 25, 1729 (1970).
- R6. Roy, N.K., D.K. Guha and M.N. Rao, "Suspension of Solids in a Bubble Liquid," *Chem. Eng. Sci.*, 19, 215 (1964).
- S1. Saito, H. and T. Kobayashi, "Mass Transfer from Solid Particles to Liquid Suspended in a Bubble Column," *Kagaku Kogaku*, 29, 237 (1965).
- S2. Sano, Y., N. Yamaguchi and T. Adachi, "Mass Transfer Coefficients for Suspended Particles in Agitated Vessels and Bubble Columns," *J. Chem. Eng. Japan*, 7, 255 (1974).

- S3. Sanger, P. and W.-D. Deckwer, "Liquid-Solid Mass Transfer in Aerated Suspensions," *Chem. Eng. J.*, 22, 179 (1981).
- S4. Schumpe, A. and W.-D. Deckwer, "Gas Holdups, Specific Interfacial Areas, and Mass Transfer Coefficients of Aerated Carboxymethyl Cellulose Solutions in a Bubble Column," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 21, 706 (1982).
- S5. Shah, Y.T., B.G. Kelkar, S.P. Godbole and W.-D. Deckwer, "Design Parameters Estimations for Bubble Column Reactors," *AIChE J.*, 28, 353 (1982).
- S6. Shirai, T., "Fluid Flow through Fixed Beds; Representation of the Fluid Friction with the Drag Coefficient of Single Particles, CD," *Kagaku Kogaku*, 20, 434 (1956).
- S7. Simpson, J.M., "Heat Transfer to Liquid Fluidized Beds," PhD Thesis, Polytechnic Institute of Brooklyn, 1973.
- S8. Smith, J.W. and D.H. King, "Electrochemical Wall Mass Transfer in Liquid Particulate Systems," *Can. J. Chem. Eng.*, 53, 41 (1975).
- S9. Smith, D.N. and J.A. Ruether, "Dispersed Solid Dynamics in a Slurry Bubble Column," *Chem. Eng. Sci.*, 40, 741 (1985).
- S10. Stiegel, G.J. and Y.T. Shah, "Backmixing and Liquid Holdup in a Gas-Liquid Cocurrent Upflow Packed Column," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 16, 37 (1977).
- S11. Sugawara, T. and T. Yamanishi, "Behaviors of Solid Particles in Bubble Columns," *Kagaku Kogaku*, 30, 1136 (1966).
- T1. Taylor, G.I., "The Instability of Liquid Surfaces When Accelerated in a Direction Perpendicular to their Planes. I," *Proc. Royal Soc. London, Ser. A*201, 192 (1950).
- T2. Tournie, P., C. Laguerie and J. P. Couderc, "Mass Transfer in a Liquid Fluidized Bed at Low Reynolds Numbers," *Chem. Eng. Sci.*, 32, 1259 (1977).
- U1. Ueyama, K. and T. Miyauchi, "Determination of Mean Bubble Diameters Based on Observation by a Two-Point Electric Probe," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 2, 430 (1976).
- U2. Ueyama, K. and T. Miyauchi, "Behavior of Bubbles and Liquid in a Bubble Column," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 3, 19 (1977).
- U3. Ueyama, K. and T. Miyauchi, "Properties of Recirculating Turbulent Two Phase Flow in Gas Bubble Columns," *AIChE J.*, 25, 258 (1979).
- U4. Ueyama, K., S. Morooka, K. Koide, H. Kaji and T. Miyauchi, "Behavior of Gas Bubbles in Bubble Columns," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 19, 592 (1980).

- V1. Viswanathan, S., A.S. Kaker and P.S. Murti, "Effect of Dispersing Bubbles into liquid Fluidized Beds on Heat Transfer and Hold-Up at Constant Bed Expansion," Chem. Eng. Sci., 20, 903 (1964).
- W1. Wakao, N. and S. Yagi, "Theoretical Temperature Distribution in Packed Bed," Kagaku Kogaku, 23, 161 (1959).
- W2. Wallis, G.B., One Dimensional Two-Phase Flow, McGraw-Hill New York (1969).
- W3. Wasmund, B., "A Study of Wall to Fluid Heat Transfer in Liquid Fluidized Beds," Ph D Thesis, University of Tront, 1966.
- W4. Wasmund, B. and J.W. Smith, "Wall to Fluid Heat Transfer in Liquid Fluidized Beds Part 2," Can. J. Chem. Eng., 45, 156 (1967).
- Y1. Yagi, S. and N. Wakao, "Heat and Mass Transfer from Wall to Fluid in Packed Beds," AIChE J., 5, 79 (1959).
- Y2. Yagi, S. and D. Kunii, "Stidies on Heat Transfer in Packed Beds," Int. Devel. Heat Transfer IV, 750 (1961).
- Y3. Yagi, S., D. Kunii and K. Endo, "Heat Transfer in Packed Beds through Which Water Is Flowing," Int. J. Heat Mass Transfer, 7, 333 (1964).
- Y4. Yoshikawa, M., K. Iwai, S. Goto and H. Teshima, "Liquid- Solid Mass Transfer in Gas-Liquid Cucurrent Flows through Beds of Small Packings," J. Chem. Eng. Japan, 14, 444 (1981).

謝 辞

本研究は鳥取大学工学部資源循環化学科反応工学研究室において、安西晟教授（現、同大学工学部生物応用工学科教授）ならびに室山勝彦助教授（現、関西大学工学部教授）の指導の下に行った研究成果をまとめたものである。研究に当たり、安西晟先生ならびに室山勝彦先生には、終始懇切なるご指導を賜りましたことに衷心より感謝致します。

さらに本研究の取りまとめに対して終始暖かいご指導、ご助言を賜りました京都大学大学院工学研究科化学工学専攻 橋本健治教授に深甚の謝意を表します。同時に論文作成に対し有益なご教示を賜りました京都大学大学院工学研究科化学工学専攻 岡崎守男教授ならびに荻野文丸教授に厚く御礼申し上げます。

また本研究は、鳥取大学工学部資源循環化学科に当時在籍した学生諸氏の卒業研究として多くの方々のご協力を得たものであり、ここに付記しこれらの方々に心より感謝致します。

そして古田武教授には、先生が京都大学在籍時には本研究に対して種々ご教示を頂き、また今、本論文提出に対し便宜を与えて頂いたことに感謝致します。

平成7年4月

本論文は下記の紙上に発表した研究報告を基に作成したものである。

1. K. Muroyama, M. Fukuma, and A. Yasunishi
"Wall-to-Bed Heat Transfer Coefficient in Gas-Liquid-Solid Fluidized Beds",
The Canadian Journal of Chemical Engineering, Vol. 62, No. 2, pp. 199-208
(1984)
2. K. Muroyama, M. Fukuma, and A. Yasunishi
"Wall-to-Bed Heat Transfer in Liquid-Solid and Gas-Liquid-Solid Fluidized Beds. Part I: Liquid-Solid Fluidized Beds",
The Canadian Journal of Chemical Engineering, Vol. 64, No. 3, pp. 399-408
(1986)
3. K. Muroyama, M. Fukuma, and A. Yasunishi
"Wall-to-Bed Heat Transfer in Liquid-Solid and Gas-Liquid-Solid Fluidized Beds. Part II: Gas-Liquid-Solid Fluidized Beds",
The Canadian Journal of Chemical Engineering, Vol. 64, No. 3, pp. 409-418
(1986)
4. 安西 晟、福間三喜、室山勝彦
「高濃度スラリー気泡塔における流動特性と気液間物質移動特性」
化学工学論文集, 第12巻, 第4号, pp. 420-426 (1986)
5. A. Yasunishi, M. Fukuma and K. Muroyama
"Measurement of Behavior of Gas Bubbles and Gas Holdup in a Slurry Bubble Column by a Dual Electroresistivity Probe Method",
Journal of Chemical Engineering of Japan, Vol. 19, No. 5, pp. 444-449
(1986)

6. M. Fukuma, K. Muroyama and A. Yasunishi
"Properties of Bubble Swarm in a Slurry Bubble Column",
Journal of Chemical Engineering of Japan, Vol. 20, No. 1, pp. 28-33
(1987)
7. 安西 晟、福間三喜、室山勝彦
「液・固および3相流動層における半径方向の液混合」
化学工学論文集, 第13巻, 第2号, pp. 208-215 (1987)
8. M. Fukuma, K. Muroyama and A. Yasunishi
"Specific Gas-Liquid Interfacial Area and Liquid-Phase Mass Transfer Coefficient in a Slurry Bubble Column",
Journal of Chemical Engineering of Japan, Vol. 20, No. 3, pp. 321-324
(1987)
9. M. Fukuma, M. Sato, K. Muroyama and A. Yasunishi
"Particle-to-Liquid Mass Transfer in Gas-Liquid-Solid Fluidization",
Journal of Chemical Engineering of Japan, Vol. 21, No. 3, pp. 231-237
(1988)
10. A. Yasunishi, M. Fukuma and K. Muroyama
"Wall-to-Liquid Mass Transfer in Packed and Fluidized Beds with Gas-Liquid Concurrent Upflow",
Journal of Chemical Engineering of Japan, Vol. 21, No. 5, pp. 522-528
(1988)